

الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية

وزارة التعليم العالي و البحث العلمي

République Algérienne Démocratique et Populaire

Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

جامعة سعد دحلب البليدة

UNIVERSITE SAAD DAHLAB DE BLIDA



Faculté des Sciences  
Département de Physique

**MEMOIRE**

De fin d'étude en vue de l'obtention du diplôme de Master en physique

**Spécialité** : Physique des rayonnements

Présenté par : **BENELKAID Ahlem**

**THEME**

**Etude de l'impact radiologique due à la radioactivité naturelle dans le gisement de phosphate de Kef-Essenoun, bassin versant du Djebel Onk**

Soutenue publiquement, le 11/10/2021 devant le jury composé de :

Mr. CHIKIRIN Mamoun	MCB	USDB	President
Mme. LARABI Karima	MAA	USDB	Examineur
Mr. AZABOUCHE Ahmed	Chercheur senior	CRNA	Encadreur
Mme. BENAROUS Samiha	Doctorante	USDB	Co-encadreur

# *Remerciements*

Merci au bon Dieu qui m'a permis de faire ce travail, merci,

Ce travail a été réalisé au sein du Laboratoire des techniques nucléaires du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger CRNA. Je tiens à remercier, en premier lieu la direction de CRNA, de m'avoir permis de réaliser cette mémoire au sein du centre.

Je tiens tout d'abord à remercier mon encadreur, Docteur **AZBOUCHE Ahmed** du CRNA pour tous les efforts qu'il a consentis tout au long de l'élaboration de ce travail. Il m'a consacré beaucoup de temps, que ce soit pour les discussions scientifiques et techniques ou pour la relecture de tout ce que j'ai pu rédiger, Merci.

Egalement, Je tiens à exprimer ma profonde gratitude envers mon Co-encadreur Madame **BENAROUS Samiha** qui n'a épargné aucun effort pour me guider au sein du centre de recherche d'Alger CRTSE. Pour sa rigueur et ses exigences d'un travail bien fait, également pour ses encouragements, ses précieux conseils et la confiance qu'elle m'a toujours témoignée m'ont été d'une grande aide.

Je tiens à remercier très sincèrement **Mr CHEKIRINE Mamoun** de l'Université de Blida1 pour l'honneur qu'il me fait en acceptant la présidence de ce jury.

Je remercie également **Mme LARABI Karima** de l'université de Blida1 pour l'honneur qu'elle me fait en acceptant de juger ce travail, qu'elle trouve ici l'expression de mon profond respect.

Pour leur compétence et leur grande gentillesse, je tiens à remercier tous ceux qui ont contribué d'une façon ou d'une autre à la réussite de ce travail : les chercheurs permanents et ingénieurs du laboratoire de recherche CRNA

Je remercie tous les enseignants qui ont contribué à ma formation ainsi que le personnel administratif du département qui a toujours été présent tout au long de ce parcours.

# *Dédicaces*

*A mes très chère parents qui m'ont toujours soutenus et encourager*

*Merci pour votre patience, votre amour et vos sacrifices*

*Merci papa, merci maman,*

*Un grand merci pour*

*Mes sœurs (Nassima et Naima)*

*et mon frère (Mohamed et sa femme fati)*

*A tous ceux qui me sont chers...*

## Résumé

L'objectif de ce travail était d'évaluer le niveau d'activité des éléments radioactifs dans les échantillons de phosphate prélevés du gisement de keff Essenoun par spectrométrie gamma.

Dans notre étude nous avons utilisé un détecteur Germanium coaxial de type p (HPGe) du laboratoire de technique nucléaire, CRNA. Un total de 03 échantillons de phosphate a été prélevé de différentes couches géologiques. Le profil des activités spécifiques des radionucléides présente une activité considérable dans les points étudiés. Les valeurs moyennes obtenues pour le  $^{226}\text{Ra}$ , le  $^{232}\text{Th}$  et le  $^{40}\text{K}$  dans les trois échantillons sont respectivement  $362.639 \pm 19.328$  Bq/Kg,  $31.59 \pm 2.031$  Bq/Kg et  $59.67 \pm 4.467$  Bq/Kg. Les valeurs moyennes des Indices de risque, citant ; Le débit de dose absorbée  $189.616 \text{ nGy} \cdot \text{h}^{-1}$ , L'équivalent de dose efficace annuelle  $0.232 \text{ mSv} \cdot \text{y}^{-1}$ , l'équivalent de dose annuelle des gonades  $1271.339 \text{ } \mu\text{Sv} \cdot \text{y}^{-1}$ , Excès de risque de cancer à vie  $0.81$ , le radium équivalent  $412,408$  Bq/Kg, Indices de risque externe et interne (Hin, Hex)  $2.094$  et  $1.114$  respectivement,

Les valeurs des paramètres évalués sont en majorité en dessus des valeurs limites établies par « UNSCEAR ». Le calcul du risque radiologique externe nous donne de croire que les travailleurs ne sont pas à l'abri du danger de cette radioactivité naturelle. La vigilance sur ces valeurs de doses élevées permet de réduire ces risques radiologiques en appliquant les mesures de radioprotection appropriées.

**Mots-clés :** Détecteur Germanium coaxial, spectrométrie gamma, phosphate, activités spécifiques, Indices de risque, radioprotection.

The objective of this work was to assess the level of activity of radioactive elements in the phosphate samples taken from the Keff Essenoun deposit by gamma spectrometry. In our study we used a p-type coaxial Germanium detector (HPGe) from the nuclear technology laboratory, CRNA. A total of 03 phosphate samples were taken from different geological strata. The profile of the specific activities of the radionuclides shows a considerable activity in the studied points. The average values obtained for the  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  and  $^{40}\text{K}$  in the three samples are respectively  $362.639 \pm 19.328$  Bq/Kg,  $31.59 \pm 2.031$  Bq/Kg et  $59.67 \pm 4.467$  Bq/Kg. The average values of hazards Indices, such, absorbed dose  $189.616$  nGy. $h^{-1}$ , AEDE  $0.232$  mSv. $y^{-1}$ , AGDE  $1271.339$   $\mu\text{Sv}.y^{-1}$ , ELCR  $0.81$ ,  $R_{\text{eq}}$   $412,408$  Bq/Kg, Hin, Hex was found to be  $2.094$  and  $1.114$  respectively. The values of the evaluated parameters are mostly above the limit values established by "UNSCEAR". Calculating the external radiological risk leads us to believe that workers are not immune to the danger of this natural radioactivity. Vigilance over these high dose values makes it possible to reduce these radiological risks by applying the appropriate radiation protection measures.

**Keywords:** Coaxial Germanium detector, gamma spectrometry, phosphate, specific activities, Risk indices, radiation protection.

# Table des matières

Introduction générale .....	1
<b>Chapitre I : Généralité sur la radioactivité et la dosimétrie</b>	
I.1. La radioactivité .....	3
I.1.1. Définition de la radioactivité .....	3
I.1.2. Lois de la décroissance radioactive.....	4
I.1.3. Types de la radioactivité .....	5
I.1.4. Filiation radioactive .....	5
I.1.5. Equilibre séculaire .....	6
I.2. Origine de la radioactivité dans l'environnement.....	7
I.2.1. Radioactivité naturelle .....	7
I.2.1.1. Famille du potassium ( $^{40}\text{K}$ ) .....	7
I.2.1.2. Famille de L'uranium.....	8
I.2.1.3. Famille du thorium .....	8
I.2.2. Radioactivité artificielle.....	9
I.3. Dosimétrie des rayonnements ionisants .....	10
I.3.1. Evaluation des doses .....	10
I.3.1.1. Débit de Dose Absorbée (ADR).....	10
I.3.1.2. Equivalent de Dose Efficace Annuelle (AEDE) .....	10
I.3.1.3. Équivalent de Dose Annuelle des Gonades (AGDE).....	11
I.3.2. Paramètres radiologiques .....	11
I.3.2.1. Radium équivalent (Raeq).....	11
I.3.2.2. Indices de risques externe et interne (Hex, Hin) .....	11
I.3.2.3. L'excès de risque de cancer à vie (ELCR).....	12
<b>Chapitre II: Spectrometrie gamma</b>	
II.1 Interactions photon-matière.....	13
II.1.1. Effet photoélectrique .....	15
II.1.2. Effet Compton .....	15
II.1.3. Création de paires .....	17
II.2 Spectrométrie gamma.....	17
II.2.1. Chaîne de détection .....	18
II.2.2 Détecteurs des rayonnements gamma.....	19
II.2.2.1. Scintillateurs .....	19
II.2.2.2. Détecteur à semi-conducteurs : .....	20
II.3. Principales caractéristiques d'un détecteur .....	21

II.3.1. Efficacité de détection .....	21
II.3.2. Résolution en énergie FWHM.....	22
II.3.3. Temps mort :.....	<b>Erreur ! Signet non défini.</b>
<b>Chapitre III : Etude expérimentale</b>	
III.1. Présentation de la zone d'étude.....	<b>Erreur ! Signet non défini.</b>
III.1.1. Situation géographique du site .....	23
III.2. Techniques d'échantillonnage .....	24
III.2.1. Echantillonnage.....	24
III.2.2. Préparation des échantillons.....	24
III.3. Analyse spectrométrique.....	26
III.3.1. Instrumentation.....	26
III.3.2. Etalonnage de la chaîne de mesures.....	26
III.3.2.1. Etalonnage en énergie.....	27
III.3.2.2. Etalonnage en efficacité.....	28
III.3.3. Analyse quantitative.....	30
<b>Chapitre IV : Résultats et discussion</b>	
IV.1. Mesure d'activité .....	32
IV.2. Indice de risque.....	35
IV.2.1. Evaluation de la dose .....	35
IV.2.1.1. Débit de Dose Absorbée (AEDR) .....	35
IV.2.1.2. Équivalent de Dose Efficace Annuelle (AEDE) .....	36
IV.2.1.3. Équivalent de Dose Annuelle des Gonades (AGDE).....	37
IV.2.1.4. Excès de risque de cancer à vie (ELCR) .....	37
IV.2.2. Paramètres radiologiques .....	38
IV.2.2.1. Radium équivalent (Raeq).....	38
IV.2.2.2. Indices de risque externe et interne (Hex, Hin).....	39
Conclusion générale.....	40
Références	

## Liste des figures

<b>Figure 1.1</b>	Equilibre séculaire du Rn-222	<b>6</b>
<b>Figure 1.2</b>	Schéma de désintégration de 40K	<b>7</b>
<b>Figure 1.3</b>	Chaîne de désintégration de l' <sup>238</sup> U	<b>8</b>
<b>Figure 1.4</b>	Chaîne de désintégration de l' <sup>232</sup> Th.	<b>9</b>
<b>Figure II.1</b>	Représente La Classifications Des Rayonnements	<b>13</b>
<b>Figure II.2</b>	Prédominance Du Type D'interaction En Fonction De L'énergie Et Du numéro Atomique Du Matériau.	<b>14</b>
<b>Figure II.3</b>	Représente L'effet Photoélectrique	<b>15</b>
<b>Figure II.4</b>	Représente L'effet Compton	<b>16</b>
<b>Figure II.5</b>	Représente création de paires	<b>17</b>
<b>Figure II.6</b>	Schéma de l'ensemble de détection.	<b>18</b>
<b>Figure II.7</b>	Schéma des bandes d'énergie dans un solide cristallin. EC est l'énergie de la bande de conduction, EV l'énergie de la bande de valence et EG la largeur de la bande interdite	<b>20</b>
<b>Figure II.8</b>	Schéma représentatif des composantes d'un détecteur Germanium ultra pure.	<b>21</b>
<b>Figure II.9</b>	Définition de la résolution pour un pic parfaitement gaussien	<b>22</b>
<b>Figure III.1</b>	Carte de situation géographique Djebel Onk	<b>23</b>
<b>Figure III.2</b>	① roche de phosphate, machine de ②concassage, ③broyage, ④tamisage	<b>24</b>
<b>Figure III.3</b>	Matériels utilisés pour la préparation des échantillons	<b>25</b>
<b>Figure III.4</b>	Conditionnement des échantillons.	<b>25</b>
<b>Figure III.5</b>	La chaîne de spectrométrie gamma utilisant un détecteur à semi.conducteur HPGe avec une résolution de 1,8 keV à 1332,5 keV ligne de Co.60 et 35% d'efficacité relative	<b>26</b>
<b>Figure III.6</b>	Droite d'étalonnage de la source d'euporium.152.	<b>27</b>
<b>Figure III.7</b>	Courbe d'efficacité expérimentale du détecteur pour la mixed source en fonction de l'énergie	<b>29</b>
<b>Figure IV.1</b>	Les activités spécifiques de <sup>226</sup> Ra, <sup>232</sup> Th et 40K dans les échantillons étudiés	<b>32</b>
<b>FigureIV.2</b>	Le début de dose absorbée pour les 3 échantillon.	<b>34</b>
<b>Figure IV.3</b>	L'équivalent de dose efficace annuelle AEDE pour les 3 échantillons	<b>36</b>
<b>Figure IV.4</b>	Équivalent de Dose Annuelle des Gonades AGDE pour les 3 échantillon	<b>36</b>
<b>Figure IV.5</b>	Excès de risque de cancer à vie ELCR pour les 3 échantillons de phosphate	<b>37</b>
<b>Figure IV.6</b>	Le radium équivalent Ra <sub>eq</sub> pour les 3 échantillons	<b>38</b>
<b>Figure IV.7</b>	Indices de risque externe et interne Hex, Hin pour les 3 échantillons	<b>38</b>



## Liste des tableaux

<b>Tableau I.1</b>	Les types de désintégrations	<b>5</b>
<b>Tableau III.1</b>	Représentation des point d'échantillonnage en fonction de la couche géologique	<b>24</b>
<b>Tableau III.2</b>	Les valeurs des energies et des canaux d'europium-152	<b>27</b>
<b>Tableau III.3</b>	Caractéristiques expérimentales de la source mixte, et les valeurs d'efficacité	<b>29</b>
<b>Tableau III.4</b>	L'efficacités correspondante aux radioéléments et leurs descendants	<b>31</b>
<b>Tableau. IV.1</b>	Les activités spécifiques en (bq.kg-1) des radionucléides naturels présents dans les echantillons de phosphate	<b>33</b>
<b>Tableau. IV.2</b>	Comparaison de la valeur d'activité moyenne obtenu pour chaque radioélément avec les valeurs admissibles par l'unscear	<b>33</b>
<b>Tableau. IV.3</b>	Comparaison de la valeur d'activité moyenne obtenu pour chaque radioélément avec les valeurs admissibles par l'unscear	<b>34</b>
<b>Tableau. IV.4</b>	Doses estimées pour les echantillons	<b>35</b>
<b>Tableau. IV.5</b>	Indices de risque radiologique calculés pour les 3 echantillons de phosphate	<b>38</b>

## *Liste des abréviations*

**CRNA** : Centre de Recherche Nucléaire d'Alger.

**UNSCEAR** : Comité Scientifique des Nations Unies pour l'Etude des Effets des Rayonnements ionisants.

**CIPR** : Commission internationale de protection radiologique

**ADR** : Le débit de dose absorbée.

**AEDE** : L'équivalent de dose efficace annuelle

**AGDE** : Équivalent de Dose Annuelle des Gonades

**R<sub>aeq</sub>** : Radium équivalent

**Hex** : indice de risque externe

**Hin** : indice de risque interne

**ELCR** : L'excès de risque de cancer à vie

**ADC** : convertisseur analogique-numérique

**MCA** : analyseur multicanaux

**DSA** : analyseur de signal numérique

**KS** : Kef Essennoun

**NORM** : matières radioactives naturelles

# **Introduction générale**

L'Algérie, un des pays du monde disposant d'importantes réserves de phosphate estimées à environ deux milliards de tonnes. Ces ressources sont concentrées principalement au niveau du bassin minier de Djebel Onk – Tébessa (Nord Est algérien). Ces gisements sont exploités presque en totalité sous forme de minerai enrichi par la Société des Mines de Phosphates SOMIPHOS–Filiale de FERPHOS Group, actuellement le seul propriétaire des mines de Kef Es Sennoun, de Djemi Djema, de Djebel Onk Nord, de Oued Betita et de Bled El Hadba. L'usine de traitement se trouve à quelques kilomètres de la ville de Bir el Atter.

La radioactivité naturelle liée aux phosphates a toujours constitué un souci pour les opérateurs dans les gisements des phosphates, ainsi que l'environnement vue leurs utilisation dans le développement de l'agriculture qui est la plus grande consommatrice d'engrais phosphatés. En dehors du rôle fondamental du phosphore dans la production agricole, les 15% des phosphates d'usage non agricole sont utilisés dans la métallurgie (alliage), l'industrie chimique (pesticides, détergents), pétrolière (lubrifiant), alimentaire et pharmaceutique. Dans ces gisements, la concentration en potassium-40 et en radionucléides de la famille du thorium-232 est similaire à celle des autres roches. Par contre la concentration en radionucléides de la famille de l'uranium-238 est élevée, surtout pour les minerais phosphatés d'origine sédimentaire, comme le cas de Keff-Essenoun. Par conséquent, l'évaluation des niveaux de radioactivités dans ces mines est une tâche incontournable

La spectrométrie gamma offre un outil d'analyse performant pour effectuer des mesurages environnementaux. Cette méthode non destructive permet de déterminer qualitativement et quantitativement les radioéléments présents dans l'environnement et principalement les éléments naturels ainsi que leurs concentrations.

Ce travail portera essentiellement sur l'analyse des 03 échantillons de phosphate de keff-Essenoun par la spectrométrie gamma à base d'un détecteur Ge(Hp), afin de déterminer les activités spécifiques des radionucléides naturels issus des chaînes  $^{226}\text{Ra}$  et  $^{232}\text{Th}$  ainsi que du  $^{40}\text{K}$ , et d'estimer également leur impact radiologique.

Le présent manuscrit est scindé en quatre chapitres :

**Le premier chapitre** sera consacré aux généralités sur la radioactivité naturelle, nous avons introduit les diverses sources de rayonnement ainsi que la théorie associée. Nous terminerons

ce chapitre en présentant les stratégies de dosimétrie des rayonnements et les paramètres radiologiques associés.

Le deuxième chapitre nous allons présenter brièvement les bases théoriques des mécanismes d'interaction des rayonnements avec la matière, et la technique de spectrométrie gamma ainsi que les principales caractéristiques des détecteurs.

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

Le quatrième chapitre consacré aux résultats de mesures des activités spécifiques des radionucléides dans les échantillons étudiés, et l'évaluation de l'impact de la radioactivité naturelle dans le gisement de phosphate.

Ce manuscrit se terminera par une conclusion générale résumant les résultats essentiels que nous avons obtenus

**Chapitre I**

**Généralité sur la  
radioactivité et la dosimétrie**

Ce chapitre présente une brève description des notions de la radioactivité et ses différents types. On y mentionne les familles radioactives naturelles qui existent dans l'environnement. Une partie est également consacrée à l'étude des différents paramètres radiologique qui vont servir prochainement pour la mesure du risque dans notre zone d'étude.

## I.1. La radioactivité

La radioactivité fut découverte en 1896 par Henri Becquerel, qui constata que les sels d'uranium imprimaient une plaque photographique protégée de toute lumière. Cette expérience lui permit de mettre en avant que l'uranium émet un rayonnement spontané qu'il nomma « rayons uraniques ». Marie Curie, en 1898 découvrit que la pechblende, roche composée d'oxyde d'uranium, est émettrice de rayonnements en plus grande quantité que l'uranium seul. Elle en déduisit qu'elle contenait d'autres rayonnements plus actifs. Avec son mari Pierre Curie ils découvrirent deux nouveaux éléments : le polonium et le radium, Marie Curie donna le nom de "radioactivité" à ce phénomène physique [1].

### I.1.1. Définition de la radioactivité

La radioactivité est la désintégration d'un élément père instable vers un élément fils en émettant de l'énergie sous forme de rayonnement. L'activité d'un matériau radioactif est le nombre de désintégrations par seconde, exprimée en Becquerel (Bq), 1 Bq correspond à une désintégration par seconde. Elle se calcule à partir du nombre de noyaux radioactifs et de la période du radionucléide (I.1). La période radioactive est le temps nécessaire pour que le nombre de noyaux initiaux ( $N$ ) soit divisé par deux [1].

$$A = \lambda N = \frac{\ln(2)}{T_{1/2}} N \quad (\text{I.1})$$

Avec :

$A$  : activité d'un radionucléide [Bq]

$\lambda$  : constante radioactive [ $s^{-1}$ ]

$N$  : nombre de noyaux radioactifs

$T_{1/2}$  : période du radionucléide [s]

### I.1.2. Lois de la décroissance radioactive

Soit une substance radioactive contenant  $N$  noyaux instables à l'instant  $t$ . En absence de tout apport externe d'énergie, la variation du nombre de noyaux se désintégrant par unité de temps  $dt$  est proportionnelle au nombre de noyaux présents à l'instant  $t$  ;

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N \quad (\text{I.2})$$

La solution de l'équation de décroissance radioactive simple s'écrit :

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (\text{I.3})$$

La période radioactive est par définition le temps  $T$  nécessaire pour que la moitié du nombre  $N$  de noyaux initialement présents se soit désintégrée :

$$N(T_{1/2}) = \frac{N_0}{2} \quad (\text{I.4})$$

En utilisant la loi de décroissance exponentielle, un simple calcul permet de montrer que :

$$T = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (\text{I.5})$$

Si on exprime le temps en tranches équidistantes de la période radioactive  $T$  de la forme :

$$t = nT \text{ avec } n = 0, 1, 2, 3, \dots$$

La relation d'évolution de la loi de décroissance s'écrit alors :

$$N(t) = N(nt) = N_0 e^{-\frac{\ln 2}{T} nT} \quad (\text{I.6})$$

$$N(n) = N_0 e^{-n \ln 2} \quad (\text{I.7})$$

$$N(n) = \frac{N_0}{2^n} \quad (\text{I.8})$$

L'activité est donc le taux de désintégration par unité de temps.

$$A = \left| \frac{dN}{dt} \right| \quad (\text{I.9})$$

Soit :

$$A(t) = \lambda N(t) = (\lambda N_0) e^{-\lambda t} \quad (\text{I.10})$$

$$A(t) = A_0 e^{-\lambda t} \quad (\text{I.11})$$

L'activité est exprimée par Becquerel et notée Bq. 1 Bq est équivalent à une désintégration par seconde. Lorsque celle-ci est rapportée à une unité massique (Bq/kg) ou volumique (Bq/l), nous parlons d'activité massique ou volumique. L'ancienne unité de mesure de l'activité est le Curie (Ci). Elle correspond à l'activité d'un gramme de radium ( $37 \times 10^9$  désintégrations par seconde). 1 nCi correspond à 37 Bq. [2]



### I.1.3. Types de la radioactivité

La transformation d'un radioélément de l'état instable vers l'état de stabilité par l'émission d'énergie sous forme d'un rayonnement ( $\alpha, \beta, \gamma$ ) c'est un processus appelé désintégration [3]

On distingue principalement quatre types de désintégrations selon le tableau suivant :

Type de désintégration	Equation
<b>Désintégration <math>\alpha</math></b>	${}^A_ZX \rightarrow {}^{A-4}_{Z-2}Y + {}^4_2He$
<b>Désintégration <math>\beta^-</math></b>	${}^A_ZX \rightarrow {}^A_{Z+1}Y + e^- + \bar{\nu}$
<b>Désintégration <math>\beta^+</math></b>	${}^A_ZX \rightarrow {}^A_{Z-1}Y + e^+ + \nu$
<b>Capture électronique CE</b>	${}^A_ZX + e^- \rightarrow {}^A_{Z-1}Y + \nu$

**Tableau I.1.** Les types de désintégrations

**La fission spontanée** est un processus de décomposition, dans lequel un noyau lourd instable se divise spontanément et aléatoirement en noyaux plus légers.

On sait, depuis les premiers travaux de Stueckelberg et BARNES (1959) et PRICE et WALKER (1962) que la fission spontanée se créait à partir d'uranium 238 contenu dans le minéral naturel très lentement avec la constante de fission de  $6.85 \cdot 10^{-17}$  par année [4].

### I.1.4. Filiation radioactive

On appelle filiation radioactive la série de désintégrations successives que subissent certains noyaux lourds dont le temps de vie est de l'ordre du milliard d'années comme l' ${}^{238}U$ ,  ${}^{232}Th$ ,  ${}^{40}K$ , dans laquelle l'atome instable se transforme en un atome moins instable moyennant une redistribution de l'énergie de liaison entre les différents nucléons du noyau de cet atome. Le réaménagement interne du noyau père conduit à un noyau fils qui s'il est lui-même radioactif conduit à un nouveau noyau, et ainsi de suite jusqu'à atteindre un noyau stable. Chaque réarrangement donne lieu à l'émission d'un rayonnement. Le passage du noyau père au noyau fils est caractérisé par les équations d'évolution comme l'indique la relation (I.12) [5].



Où  $X_n$  est l'isotope stable de la filiation radioactive,  $\lambda_i$  est la constante désintégration qui est liée à la période :  $\lambda = \frac{\ln 2}{T}$

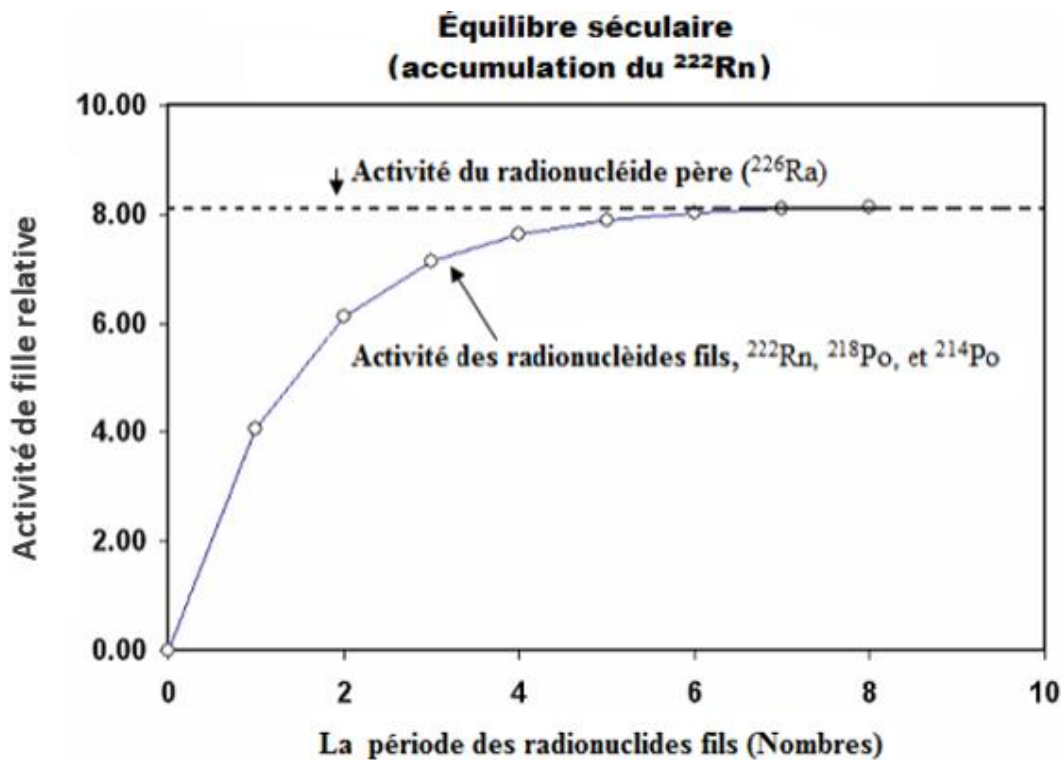
$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 \cdot N_1(t) \Rightarrow N_1(t) = N_1(0)e^{-\lambda_1 t} \quad (\text{I.13})$$

$$\frac{dN_2}{dt} = +\lambda_1 \cdot N_1 - \lambda_2 N_2(t) \Rightarrow N_2(t) = N_1(0) \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} [e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}] \quad (\text{I.14})$$

$$A_2(t) = N_2(t) \cdot \lambda_2 = A_1(0) \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} [e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}] \quad (\text{I.15})$$

### I.1.5. Equilibre séculaire

En physique nucléaire, l'équilibre séculaire est une situation où la quantité d'un radio isotope reste constante du fait que son taux de production (dû, par exemple à la désintégration d'un isotope-parent) est égal à son taux de désintégration. Quand la période (T) du « père » est très supérieure à celle des fils. L'activité du noyau fils augmente jusqu'à arriver au même niveau que celle du noyau père et reste constante. [6]



**Figure I.1 :** Equilibre séculaire du  $^{222}\text{Rn}$

L'équilibre séculaire, est atteint après un temps égal à environ 10 fois la période du fils dont la période physique est la plus faible d'où la nécessité dans notre cas d'attendre 30 jours avant de commencer l'acquisition. Cela peut facilement se comprendre à travers la figure (I.1)[6]. Les échantillons fermés hermétiquement doivent être conservé pendant 30 jours pour

atteindre l'équilibre séculaire du  $^{226}\text{Ra}$  avec ses descendants. Cette durée représente environ 8 fois la période radioactive du  $^{222}\text{Rn}$  ( $T^{222}\text{Rn} = 3.8235$  jour), comme le montre la figure (I.1).

## I.2. Origine de la radioactivité dans l'environnement

### I.2.1. Radioactivité naturelle

La population mondiale est toujours exposée à des rayonnements ionisants présents dans l'environnement. 85% de cette exposition est due à la radioactivité naturelle [7] et chaque être humain est exposé approximativement à  $3\text{ mSv}$  annuellement [8]. La radioactivité naturelle existe depuis la naissance de l'univers et est causée par des radioéléments à longues demi-vies, présents dans la croûte terrestre. Elle se trouve dans les roches, les sols, les eaux, l'air et même dans le corps humain suite à l'ingestion de denrées alimentaires. La radioactivité tellurique est issue des trois familles radioactives naturelles dont les radionucléides primordiaux de très longues périodes, tel que l'uranium, le thorium et le potassium. Ces radionucléides lourds ont tendance à se désintégrer en éléments plus légers. Qui peuvent être soit radioactifs ou non radioactifs. Le potassium radioactif se désintègre directement en calcium ou en argon, tous les deux sont stables. Mais la désintégration de l'uranium et du thorium est beaucoup plus intéressante : ces éléments se désintègrent à travers une série d'éléments radioactifs (y compris le radon) jusqu'à atteindre le plomb stable. Les familles radioactives de l'uranium et du thorium, en plus du potassium radioactif représentent une bonne partie du rayonnement sur terre. Ils fournissent environ les trois quarts du rayonnement que les humains reçoivent de la nature [8].

#### I.2.1.1. Famille du potassium ( $^{40}\text{K}$ )

Le potassium est présent dans la nature sous forme de trois isotopes naturels :  $^{39}\text{K}$  (93,258%),  $^{40}\text{K}$  (0,0117%),  $^{41}\text{K}$  (6,7302%). Le  $^{40}\text{K}$  est le seul isotope radioactif du potassium naturel.

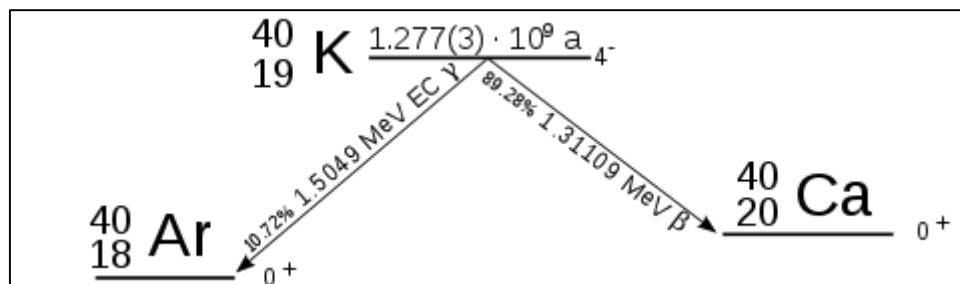


Figure I.2 : Schéma de désintégration de  $^{40}_{19}\text{K}$

Sa demi-vie est de  $1.277 \times 10^9$  ans. Le  $^{40}\text{K}$  se désintègre directement en  $^{40}\text{Ca}$  (89%) et en  $^{40}\text{Ar}$  (11%) par capture électronique et émission  $\beta$ , suivi par une désexcitation  $\gamma$  de  $1.46 \text{ MeV}$ , comme le montre la figure (I.2).

### I.2.1.2. Famille d'uranium

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

Les rayonnements émis par l'uranium sont principalement de type alpha. L'uranium a 17 isotopes, tous radioactifs, dont 3 seulement sont présents à l'état naturel :  $^{238}\text{U}$  ;  $^{235}\text{U}$  et  $^{234}\text{U}$  [9]. Dans notre travail on va s'intéresser à la famille de l'uranium  $^{238}\text{U}$  ( $4n+2$ ). Ce dernier a une demi-vie très longue ( $4.47 \times 10^9$  années) [10].

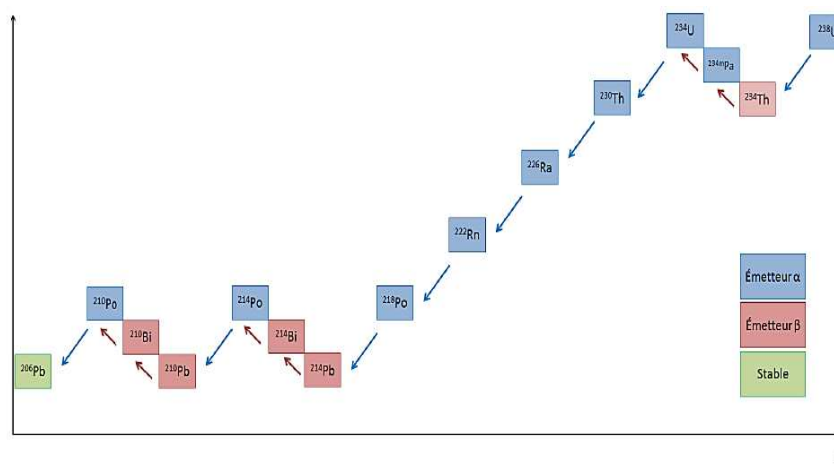


Figure I.3 : Chaîne de désintégration de l' $^{238}\text{U}$

Sa décroissance jusqu'au  $^{206}\text{Pb}$  stable est un processus qui s'étale sur 14 désintégrations ( $^{234}\text{Th}$ ,  $^{234}\text{mPa}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Po}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$ ,  $^{210}\text{Po}$ ) avec émission de 8 particules  $\alpha$  et 6 particules  $\beta$ , suivi par émission de rayonnement  $\gamma$  (figure 1.3).

### I.2.1.3. Famille du thorium

Le thorium est un métal gris découvert en 1828 par le chimiste suédois Berzelius. C'est le deuxième élément de la série des actinides. Certaines de ses propriétés le rapprochent, soit du

titane, soit du cérium, soit du plutonium. Pratiquement 100% du thorium naturel est constitué de l'isotope  $^{232}\text{Th}$ . La demi-vie du  $^{232}\text{Th}$  est très longue ( $1.41 \times 10^{10}$  années) [10].

Sa décroissance jusqu'au  $^{208}\text{Pb}$  stable produit 10 nucléides radioactifs significatifs ( $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{228}\text{Th}$ ,  $^{224}\text{Ra}$ ,  $^{220}\text{Rn}$ ,  $^{216}\text{Po}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$ ,  $^{212}\text{Po}$ ,  $^{208}\text{Tl}$ ), avec émission de 7 particules  $\alpha$  et 5 particules  $\beta$ , suivi par émission de rayonnement  $\gamma$  (figure 1.4).

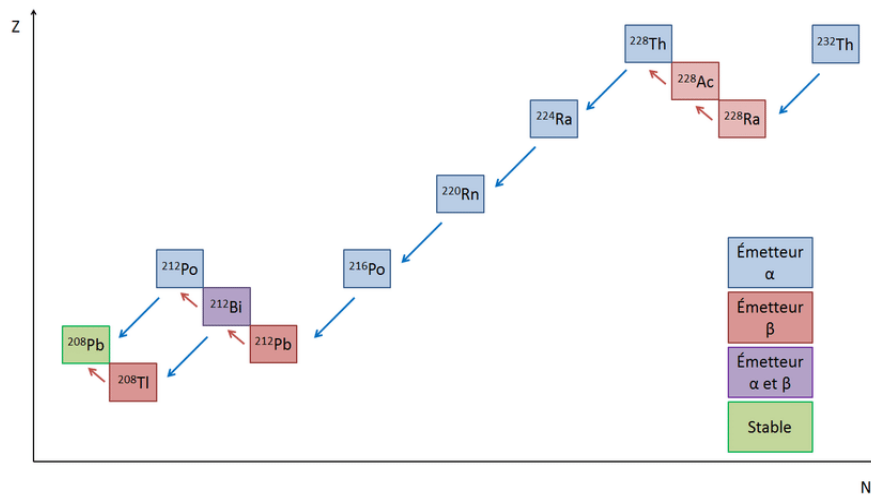


Figure I.4 : Chaîne de désintégration de l' $^{232}\text{Th}$ .

## I.2.2. Radioactivité artificielle

La radioactivité artificielle est apparue dans les différents compartiments de l'environnement juste après la seconde guerre mondiale [11]. Les sources radioactives artificielles sont produites par l'homme, pour être utilisées dans différents domaines, dans les réacteurs nucléaires ou en traitant du combustible irradié afin d'extraire les produits de fission. Les retombés nucléaires sont des matières radioactives artificielles qui se sont dispersées dans la nature suite à des essais nucléaires effectués dans l'atmosphère (ex: essais nucléaires Français dans le sud Algérien), ou après des accidents nucléaires (ex: Tchernobyl, Fukushima, etc) [12]. Des accidents dans des installations nucléaires civiles et militaires furent la source de nouvelles explosions. Les accidents de réacteurs nucléaires les plus importants sont ceux de Three Mile Island en 1979 aux Etats- Unis et de Tchernobyl en Ukraine en 1986 [13].

### I.3. Dosimétrie des rayonnements ionisants

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

#### I.3.1. Evaluation des doses

##### I.3.1.1. Débit de Dose Absorbée (ADR)

Le débit de dose absorbée détermine l'intensité d'irradiation (énergie cédée par le rayonnement ionisant et absorbée par la matière par unité de masse et de temps). Il s'exprime en Gray par seconde ( $\text{Gy}\cdot\text{s}^{-1}$ ) dans le système international mais l'unité couramment utilisée est le Gray par heure ( $\text{Gy}\cdot\text{h}^{-1}$ ). Il est utilisé en physique et en radioprotection. Le débit de dose absorbée dans l'air (ADR) à 1 mètre au-dessus du sol, qui sert à évaluer l'exposition externe au rayonnement provenant des radionucléides naturels  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$ , peut être calculé en utilisant la relation (1.16) fournie par "UNSCEAR" [7] et de la Commission européenne [14]

$$D(\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}) = 0.462A_{Ra} + 0.621A_{Th} + 0.041A_K \quad (1.16)$$

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

##### I.3.1.2. Equivalent de Dose Efficace Annuelle (AEDE)

L'équivalent de dose efficace annuelle (AEDE) estime la dose reçue par les adultes suite à une exposition externe aux rayonnements gamma. Il s'exprime en  $\text{Sv}\cdot\text{y}^{-1}$ . Il peut être calculé à l'aide de l'équation (1.17) [7].

$$\text{AEDE}(\mu\text{Sv}\cdot\text{y}^{-1}) = D(\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}) \times 8760 \text{ h} \times 0.2 \times 0.7\text{Sv}\cdot\text{Gy}^{-1} \times 10^{-3} \quad (1.17)$$

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

### I.3.1.3. Équivalent de Dose Annuelle des Gonades (AGDE)

La thyroïde, les poumons, la moelle osseuse, les cellules des surfaces osseuses, les seins et les gonades sont parmi les organes les plus radiosensibles du corps humain. Ils sont considérés comme des organes d'intérêt [15]. Par conséquent, la dose absorbée annuelle par ces organes à la suite de l'exposition aux rayons gamma s'exprime à travers l'Équivalent de Dose Annuelle des Gonades (AGDE). Il peut être déterminé à partir des concentrations des activités du  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  en utilisant l'équation (1.18) [16]

$$\text{AGDE}(\mu\text{Sv}\cdot\text{y}^{-1}) = 3.09A_{\text{Ra}} + 4.18A_{\text{Th}} + 0.314A_{\text{K}} \quad (\text{I.18})$$

## I.3.2. Paramètres radiologiques

### I.3.2.1. Radium équivalent (Raeq)

La distribution des radionucléides naturels  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  n'est pas uniforme dans les phosphates. Par conséquent, le Radium équivalent ( $Ra_{eq}$ ) a été introduit pour estimer le niveau d'activité réel de ces radionucléides et pour évaluer les risques des rayonnements associés à leur présence dans les matériaux de construction. Il est défini par l'équation (1.19) [17].

$$\text{Raq} = A_{\text{Ra}} + 1.43A_{\text{Th}} + 0.077A_{\text{K}} \quad (\text{I.19})$$

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

### I.3.2.2. Indices de risques externe et interne (Hex, Hin)

Afin d'évaluer les effets des rayonnements gamma externes issues des phosphates, l'indice de risque externe (Hex) a été introduit par Beretka et Mathew comme l'indique la relation (1.20) [18]. La valeur de Hex doit être inférieure à 1 pour garantir une utilisation sûre des matériaux de construction, qui correspond à l'activité maximum du radium-équivalent Raeq ( $370 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ).

$$H_{\text{ex}} = \frac{A_{\text{Ra}}}{370} + \frac{A_{\text{Th}}}{259} + \frac{A_{\text{K}}}{4810} \quad (\text{I.20})$$

L'indice de risque interne (Hin) est utilisé pour quantifier ce risque par la formule (1.21) [17].

$$H_{\text{in}} = \frac{A_{\text{Ra}}}{185} + \frac{A_{\text{Th}}}{259} + \frac{A_{\text{K}}}{4810} \quad (\text{I.21})$$

Ces deux indices doivent être inférieure à l'unité pour que le risque d'irradiation soit négligeable [45].

### I.3.2.3. L'excès de risque de cancer à vie (ELCR)

L'exposition aux rayonnements ionisants est la principale cause de cancer, même les faibles doses peuvent augmenter le risque de développer une maladie aussi dangereuse. Au fil du temps, l'exposition à un Sievert augmente à vie le risque d'un cancer mortel de 4% et le risque d'anomalies héréditaires à l'avenir de 0,8% [19].

L'excès de risque de cancer à vie (ELCR) peut être calculé en utilisant l'équivalent de dose efficace annuelle (AEDE)

$$\text{ELCR} = \text{AEDE} \times \text{DL} \times \text{RF} \quad (\text{I.22})$$

Où (DL) la durée de vie estimée à 70 ans et le facteur de risque (RF) qui correspond aux effets stochastiques, et qui est estimé à 0.05 Sv<sup>-1</sup> pour le public et les travailleurs selon la CIPR 60, en utilisant la relation (1.22) [20].



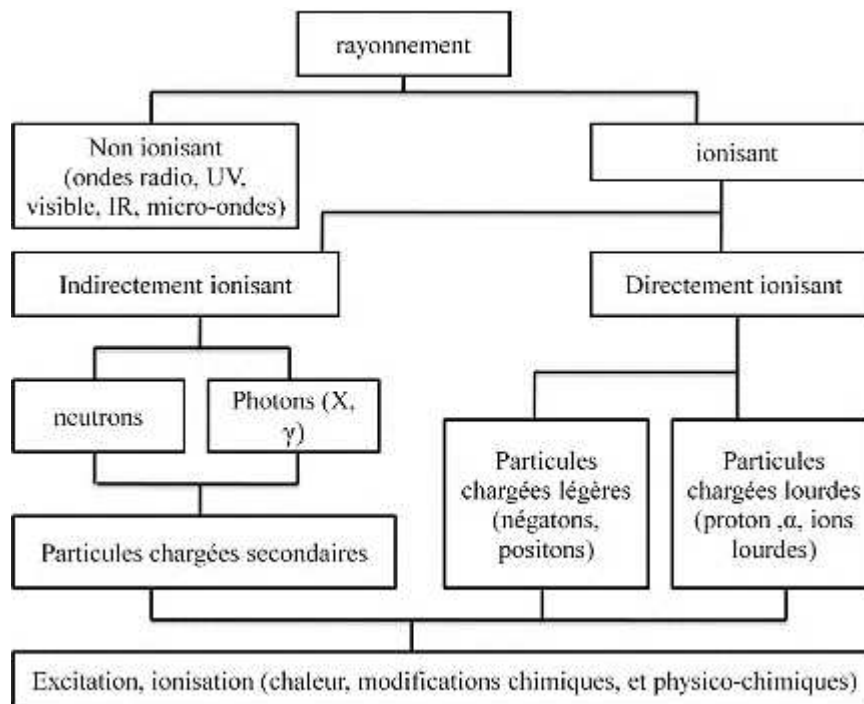
# **Chapitre II**

## **Spectrométrie gamma**

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

## II.1 Interactions photon-matière

Il est important de rappeler quelques bases sur l'émission des photons et les interactions de ces rayonnements avec la matière.



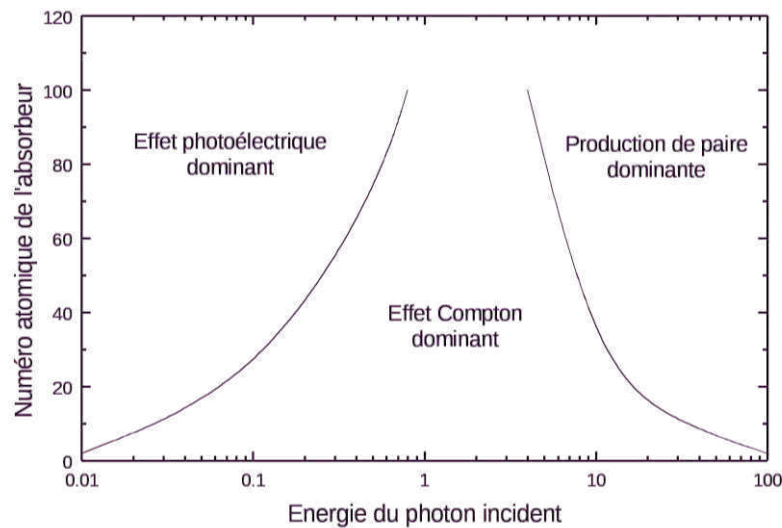
**Figure II.1** : représente la Classifications des rayonnements

Les photons sont des rayonnements électromagnétiques sans masse en repos, et très pénétrants dans la matière. Deux famille de photon se manifeste dans la nature, dont les Rayons X d'origine électronique émis lors de la désexcitation d'un atome (il s'agit de freinage bermsstrahlung : Un électron incident passant à proximité du noyau est freiné et dévie de sa trajectoire. Lorsqu'un électron libre subit une décélération, il libère une

partie de son énergie aux photon qu'il émit) et leur gamme d'énergie est 9 plus restreinte dépassant rarement 100 keV.

Et aussi le rayonnement Gamma d'origine nucléaire, ils sont émis lors de la désexcitation d'un noyau et leurs énergies sont comprises dans une gamme allant de quelques keV à quelques MeV [21].

L'interaction des rayonnements électromagnétiques avec la matière est caractérisée par le fait que chaque photon est individuellement absorbé au cours d'un seul événement [22]. Le type d'interaction dépend du matériau traversé et de l'énergie du photon incident [23]. Ces rayonnements peuvent interagir principalement par trois effets: effet photoélectrique, effet Compton et la création de paire  $e^+/e^-$ .



**Figure II.2** : Prédominance du type d'interaction en fonction de l'énergie et du numéro atomique du matériau.

### II.1.1. Effet photoélectrique

Un photon peut entrer en collision avec les électrons des couches internes d'un atome. Il consiste en l'absorption complète de l'énergie d'un photon par un atome, l'énergie du photon étant transférée à un électron du cortège atomique qui se trouve éjecté.

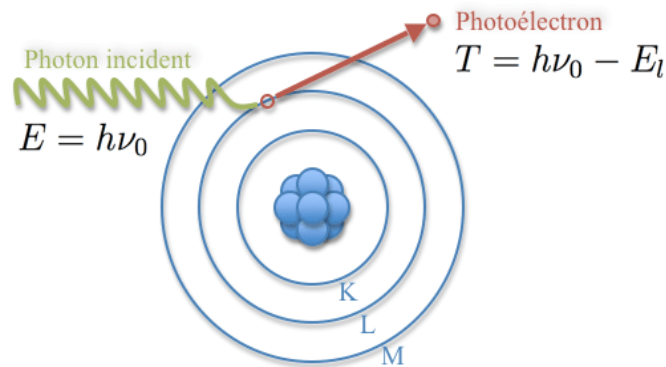


Figure II. 3 : l'effet photoélectrique

On qualifie alors cet électron de photoélectron. Celui-ci emporte une énergie cinétique :

$$E = E_{\nu} - E_l = h\nu - E_l \quad (\text{II.1})$$

Tel que  $E_{\nu}$  est l'énergie du photon et  $E_l$  l'énergie de liaison de l'électron dans l'atome. [24]

Pour que l'effet photoélectrique se produise, il faut que le photon cède à l'électron une énergie supérieure à son énergie de liaison. Celle-ci varie, pour les couches les plus internes de l'atome. et il est dominant pour les photons de faibles énergie [25].

### II.1.2. Effet Compton

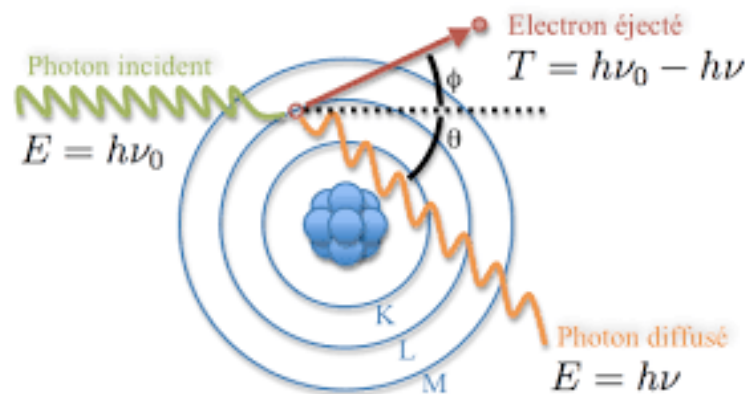
L'effet Compton c'est un processus d'interaction élastique entre un photon incident  $\gamma$  d'énergie  $E_{\gamma}$  avec un électron atomique, où le photon incident est diffusé d'un angle  $\theta$  par rapport à sa direction origine et transfère une partie de son énergie à l'électron éjecté vers une direction faisant un angle  $\phi$  par rapport à la direction initiale avec une énergie cinétique  $T_e$ .

$$E_{\gamma} = E_{\gamma'} + T_e \quad (\text{II.2})$$

L'énergie  $E_{\gamma'}$  du photon Compton diffusé peut être exprimé en fonction de l'angle  $\theta$  de diffusion du photon et de l'énergie du photon incident  $E_{\gamma} = h\nu$  et elle est donnée par la relation ( II.3) [26].

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

où  $m_e c^2 = 511 \text{keV}$  est l'énergie de masse au repos de l'électron,  $\theta$  l'angle de diffusion du photon et  $E_{\gamma}$  l'énergie du photon incident.



**Figure II.4** : Processus de l'effet Compton

Au contraire de l'effet photoélectrique, l'effet Compton concerne les électrons atomiques appartenant à des couches extrêmes de l'atome (les moins liés) car ils sont les plus nombreux.

L'énergie de l'électron Compton dépend de l'angle de diffusion du photon.

$$(\theta = 0 \text{ (Front Compton)} : E_{\gamma} = E_{\gamma'} \Rightarrow T_{e^-} = 0) \quad (\text{II.4})$$

$$\theta = \pi \text{ (Rear Compton)} : T_{e^-} = \frac{h\nu}{1 + \frac{m_e c^2}{2h\nu}} \quad (\text{II.5})$$

La probabilité d'interaction par effet Compton est proportionnelle au numéro atomique du matériau ; la diffusion Compton est donc favorisée dans les matériaux lourds sauf exception des métaux de transition comme le cuivre [24].

### II.1.3. Création de paires

Ce processus se produit pour des photons très énergétiques passant à proximité d'un noyau. Le photon incident se matérialise sous forme d'une paire électron-positron ( $e^-$ ,  $e^+$ ) de même masse et de même énergie cinétique. C'est une réaction à seuil qui n'est possible que pour des énergies des photons incidents  $E_\gamma \geq 2m_e c^2 = 1.022 \text{ MeV}$  [27]. En fin de trajectoire la rencontre d'un positron et d'un négatron donne naissance au phénomène d'annihilation. L'énergie de masse au repos de ces deux électrons (1.02 MeV) est libérée sous forme de 2 photons d'annihilation d'énergie 0.511 MeV chacun, émis en sens opposé sur même direction [28].

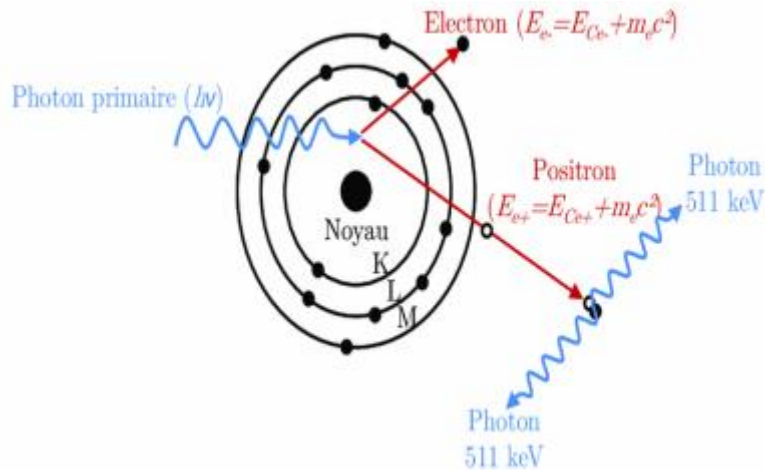


Figure II.5 : phénomène de création de paires

## II.2 Spectrométrie gamma

La spectrométrie  $\gamma$  est une méthode de mesure rapide, non destructive et multi-élémentaire pour détecter et quantifier les rayons gamma émis par les radionucléides dans différents échantillons radioactifs artificielles ou naturels. Les photons  $\gamma$  émis par l'échantillon vont interagir avec le matériau du détecteur en déposant tout ou partie de leur énergie pendant une durée donnée. Les différents événements produit (photoélectrique, Compton et création des paires) seront classés dans un histogramme ou spectre en fonction de l'énergie déposée, il est possible d'identifier les différents radionucléides (analyse qualitative) et de déterminer leurs activités spécifiques dans l'échantillon (analyse quantitative) [29].

### II.2.1. Chaîne de détection

L'ensemble de détection permet de mesurer un signal issu de l'interaction des rayonnements ionisants avec le cristal de germanium, de l'amplifier et de le mettre en forme en vue d'une analyse ultérieure. La chaîne d'acquisition est composée de cinq parties (Figure II.6) : les sources radioactives (échantillon), le détecteur (dont la partie sensible est un cristal de germanium), le préamplificateur, l'amplificateur, le convertisseur analogique-numérique (ADC) ainsi que l'analyseur multi-canaux (MCA) [24].

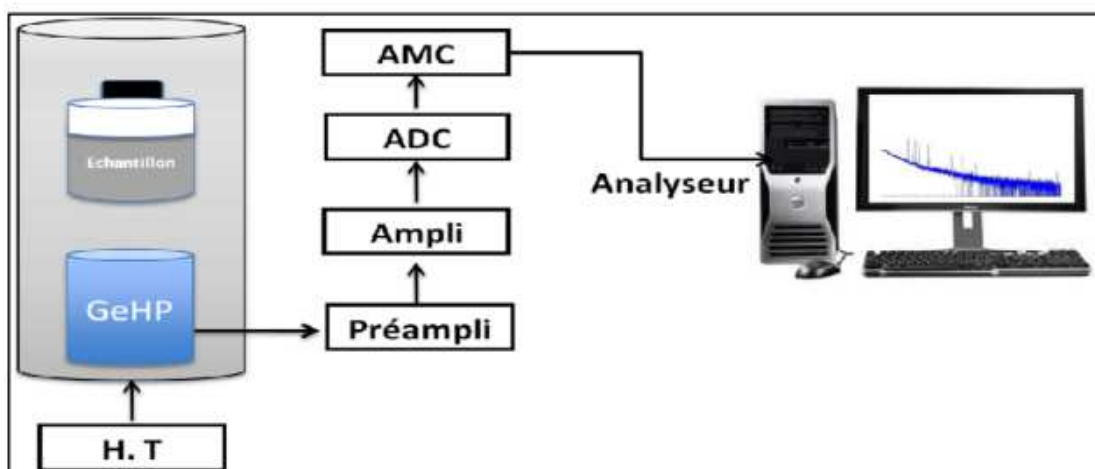


Figure II.6 : Schéma de l'ensemble de détection.

- ❖ **Le Détecteur** : La détection des rayonnements est fondée sur les phénomènes d'interaction avec la matière ; les détecteurs permettent de connaître la nature, le nombre, et l'énergie des particules émises par les sources radioactives. On peut distinguer principalement deux groupes de détecteurs d'après leurs principes de fonctionnement : ionisation de la matière par le rayonnement incident (compteur Geiger-Muller, semi-conducteurs); excitation atomique des orbitales électroniques (détecteurs scintillants type NaI (TI)) [30].
  - ❖ **Alimentation haute tension** : Tous les détecteurs de rayonnement gamma exigent une alimentation à haute tension pour fournir le champ électrique qui collecte la charge produite par l'interaction de rayons gamma dans le détecteur [31].
- ❖ **Un préamplificateur** : Son rôle est de fournir une impulsion de tension dont l'amplitude sera proportionnelle à l'énergie déposée au niveau du détecteur.
- ❖ **L'amplificateur** : réalise deux tâches essentielles : la mise en forme du signal et son amplification. [24]. Il est placé à la suite du préamplificateur pour réaliser la mise en

forme du signal. Le signal en tension est ensuite traité par l'amplificateur principal (ou amplificateur de mise en forme) où il est mis en forme et amplifié de manière à optimiser le rapport signal/bruit (S/B). La mise en forme du signal se fait avec une différenciation et une intégration qui résulte une impulsion courte par rapport au temps de descente du préamplificateur. L'amplificateur doit répondre aux mêmes exigences que celles requises pour le préamplificateur en ce qui concerne le bruit, la linéarité et la stabilité [29].

❖ **L'ADC** : est un convertisseur analogique-numérique qui permet de convertir l'impulsion du signal électrique fourni par l'amplificateur en une valeur numérique. La sortie de l'ADC est enregistrée dans une mémoire qui possède autant d'adresses que le maximum de numéro de canaux servant à découper le spectre final [33].

❖ **Analyseur multicanaux** : L'analyseur multi-canaux sert à collecter et enregistrer classer les événements issus de l'ADC dans différents canaux : chaque canal correspond à une énergie. Cela permet d'obtenir un spectre en temps réel dans lequel l'énergie déposée dans le cristal est reliée au numéro de canal et le nombre de coup dans un canal donné, et elle est proportionnelle aux nombres de photons ayant déposé la même [34].

❖ **Le logiciel de traitement et d'analyse du signal** ; Génie 2000 permet de visualiser en temps réel la sortie de l'analyseur multi-canaux, à savoir un spectre avec en abscisse le numéro de canal et en ordonnée le nombre de coups dans ce canal. De manière à pouvoir identifier les désintégrations radioactives mises en jeu, le spectre doit être étalonné en énergie. Cela consiste à établir une relation linéaire entre le numéro de canal et l'énergie déposée dans le cristal. Le spectre obtenu est alors un ensemble de pics distribués en énergie se rajoutant à un fond [35].

## II.2.2 Détecteurs des rayonnements gamma

### II.2.2.1. Scintillateurs

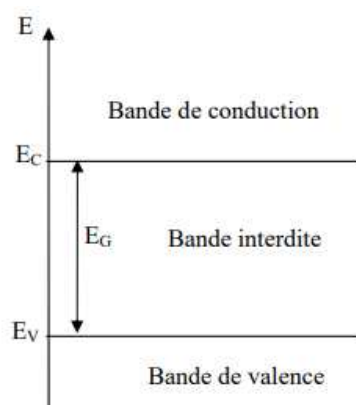
Les détecteurs à scintillation se basent dans leur fonctionnement sur l'émission de rayonnement de fluorescence à partir de l'excitation du matériau scintillant par les photons  $\gamma$  à détecter. Ces photons lumineux sont ensuite convertis en un signal électrique exploitable en passant à travers un photomultiplicateur, où ils sont transformés en électrons par effet photoélectrique au moyen d'une cathode, puis amplifiés à l'aide d'une série de dynodes et enfin recueillis par une anode. Pour les mesures en spectrométrie  $\gamma$ , le scintillateur le plus utilisé est l'iodure de sodium dopé au Thallium



(NaI(Tl)) grâce à son rendement intrinsèque de détection élevé ( $6 \cdot 10^{-2}$  à 1332 keV) et son coût moindre. Mais son domaine d'application se limite à la mesure des radionucléides émetteurs  $\gamma$  mono-énergétiques à cause de sa faible résolution en énergie (80 keV à 1332 keV).

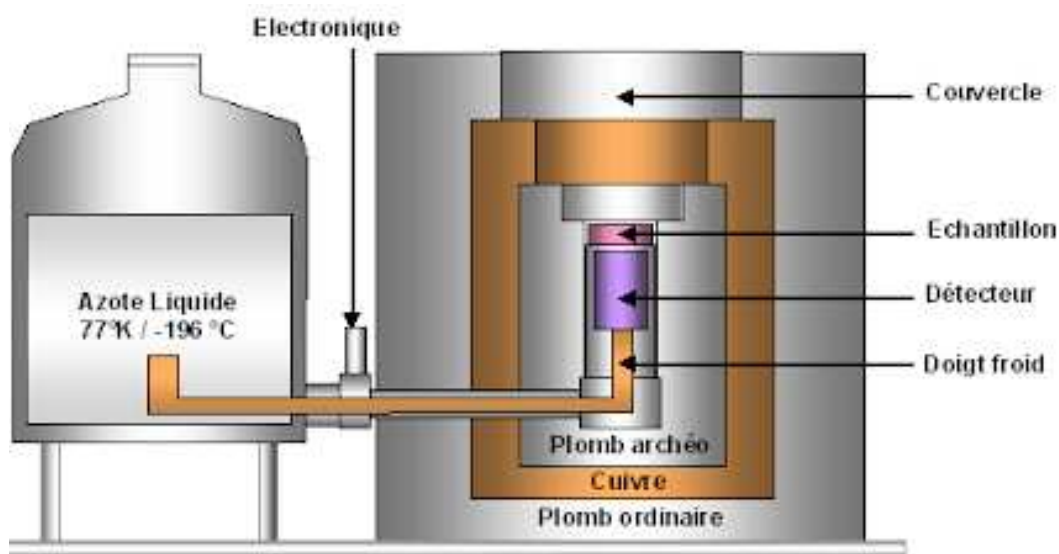
### II.2.2.2. Détecteur à semi-conducteurs :

Les semi-conducteurs sont des matériaux qui possèdent les propriétés d'un isolant et d'un conducteur en même temps. Autrement dit, ils sont à la base des isolants et suite à une excitation ils deviennent conducteurs. La conductivité électrique dans un semi-conducteur dépend de deux bandes [36 ; 37] : la bande de valence à l'intérieur de laquelle il y a des électrons responsables des liaisons covalentes et la bande de conduction dans laquelle les électrons peuvent se déplacer librement (figure II.7). Ces deux bandes sont séparées par la bande interdite que les électrons ne peuvent franchir que suite à une excitation extérieure (absorption d'un photon, chauffage intense ...).



**Figure II.7:** schéma des bandes d'énergie dans un solide cristallin.  $E_C$  est l'énergie de la bande de conduction,  $E_V$  l'énergie de la bande de valence et  $E_G$  la largeur de la bande interdite

Le détecteur semi-conducteur à base de germanium est couramment le plus utilisé en spectrométrie  $\gamma$ , grâce à sa bande interdite la plus étroite, la possibilité de créer le plus grand nombre de porteurs de charge pour un dépôt d'énergie donné et sa capacité de minimiser les fluctuations statistiques dans la mesure.



**Figure II.8** : schéma représentatif des composants d'un détecteur Germanium ultra pure.

Il existe deux types de détecteurs germanium : les détecteurs compensés au lithium Ge(Li) et les détecteurs au germanium ultra pur Ge(HP). Les détecteurs germanium compensés au lithium sont fabriqués de la même façon que les détecteurs silicium compensés au lithium. Ce type de détecteur a été commercialisé depuis le début des années 60 jusqu'au début des années 80 [32]. Les détecteurs germanium sont les détecteurs qui présentent les meilleures performances pour la détection de photons dans un large intervalle d'énergie (20 keV à 1,5 MeV) [24]. Dans notre étude en s'intéresse d'un détecteur au germanium ultra pur Ge(HP) coaxial (figure II.8).

### II.3. Principales caractéristiques d'un détecteur en spectrométrie gamma

#### II.3.1. Efficacité de détection

L'efficacité de détection est un paramètre important dans l'analyse quantitative d'une mesure. Expérimentalement en spectrométrie, on mesure l'aire du pic d'absorption totale déposé au niveau du détecteur par une intensité de photons issu d'une source radioactive [5]. On distingue deux efficacités [38].

l'efficacité intrinsèque  $\epsilon_{int}$  du détecteur, définissent la fraction de photons détectés dans le détecteur par rapport au nombre de rayonnements ayant pénétré le détecteur, est donnée par :

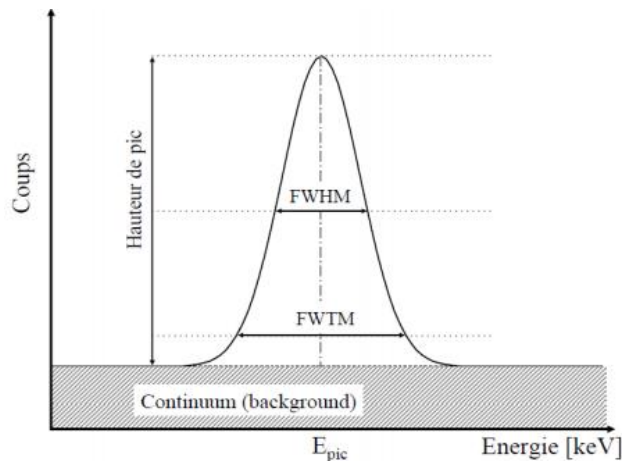
$$\epsilon_{int} = \frac{N_{det}}{\text{Nombre de rayonnements arrivant au détecteur}} \quad (\text{II.6})$$

L'efficacité absolue  $\varepsilon_{abs}$  définissent le rapport entre le nombre de photon détecté sur le nombre de rayonnements émis par la source comme suit :

$$\varepsilon_{abs} = \frac{N_{dét}}{N_{émis}} \quad (II.7)$$

### II.3.2. Résolution en énergie FWHM

La résolution en énergie mesure la capacité d'un détecteur à séparer les raies dans le spectre.



- **Figure II.9** : Définition de la résolution pour un pic parfaitement gaussien

La résolution FWHM : est la pleine largeur du pic mesurée à mi-hauteur (Figure II.9).

Et  $\Delta E$  (exprimée en KeV).

$$FWHM = \frac{\Delta E}{E} \quad (II.8)$$

### II.3.3. Temps mort :

Le temps de traitement d'une impulsion (le temps minimum entre deux impulsions successives) s'appelle le temps mort. Ce dernier est une caractéristique importante du système. Il est important d'avoir un temps mort le plus petit possible pour éviter de perdre trop d'impulsions. Le nombre de données perdues à cause de ce temps mort devient significatif quand le taux de comptage devient élevé [39].

# **Chapitre III**

## **Partie Expérimentale**

Ce chapitre est consacré, dans la première partie, à la description du matériel utilisé dans notre travail (spectromètre gamma ou chaîne de mesure, le logiciel de spectrométrie utilisé et même les échantillons) d'une part, et d'autre part à la présentation des méthodes d'analyse. Cette partie est nécessaire à la compréhension de toutes les étapes respectées pendant l'expérience,

### III.1. Présentation de la zone d'étude

#### III.1.1. Situation géographique du site

Le gisement de Kef Essennoun, principale source d'alimentation de l'usine de traitement, fait partie du bassin phosphaté de Djebel Onk. Il se situe au Nord-est de l'Algérie à environ 100 Km au Sud de la ville de Tébessa et à 20 Km de la frontière Algéro-tunisienne (Figure. III.1), à l'extrémité orientale des monts des Nememcha.

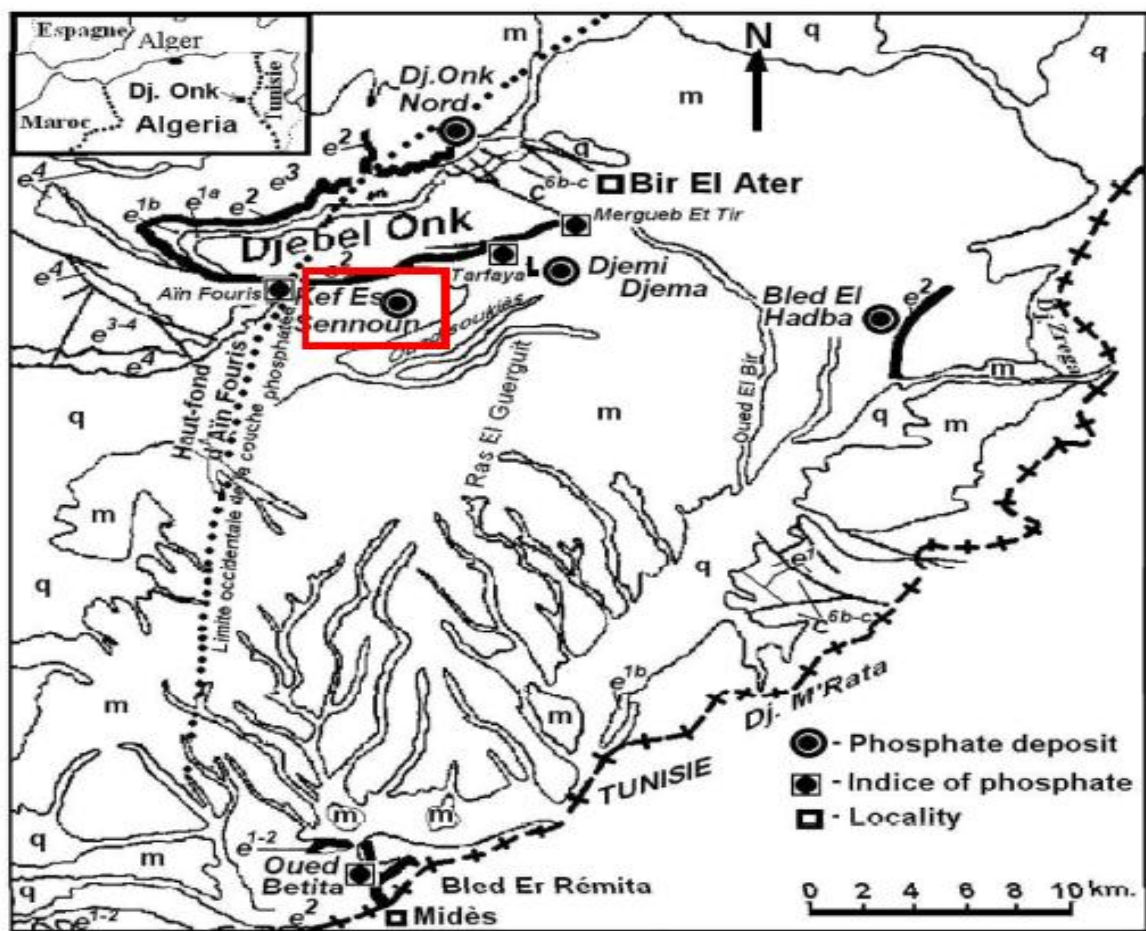


Figure III.1 : Carte de situation géographique Djebel Onk

Ce bassin minier renferme cinq gisements de phosphate qui sont: le gisement de Djemidjema, gisement de Djebel Onk Nord, gisement de Bled El Hadba, gisement d'Oued-Betita, et le gisement de Kef Essennoun (voir figure III.1). Ce dernier fait l'objet de notre travail

## III.2. Techniques d'échantillonnage

### III.2.1. Echantillonnage

Un ensemble de 03 échantillons ont été prélevé de différentes couches géologiques du gisement de Kef Essennoun comme il est illustré dans le tableau III.1 ci-après:

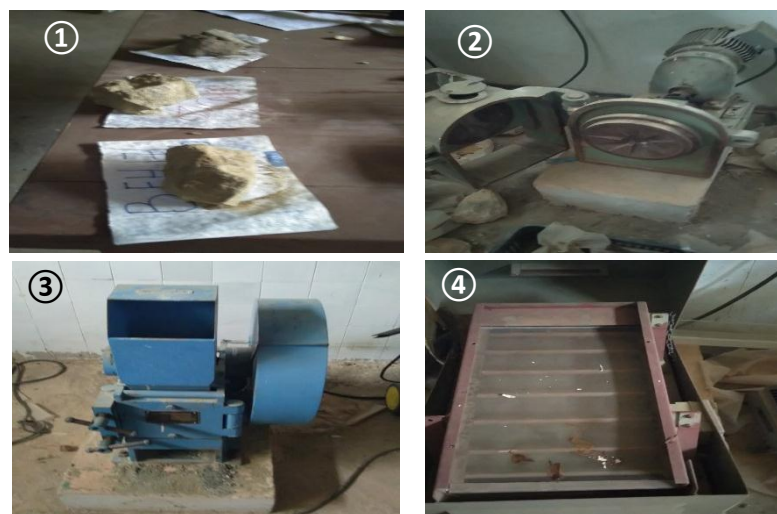
Code	Couche géologique de prélèvement
KS-01	Marnes Calcaires du thanitien inférieur, épaisseur de la couche 28 mètres.
KS-05	échantillon pris de la couche phosphatée principale, partie médiane composé de phosphate beige de structure à grain grossier et de texture friable.
KS-07	échantillon prélevé au niveau de la couche de calcaire marneux de couleur blanchâtre avec des inclusions de limonite.

**Tableau III.1** : représentation des points d'échantillonnage en fonction de la couche géologique.

Les échantillons sont mis dans des sachets en plastique libellés et transférés au laboratoire pour préparation et analyse

### III.2.2. Préparation des échantillons

Après prélèvement, les 03 échantillons du minerai de phosphates ont subi les opérations de concassage, quartage, malaxage et broyage au niveau de l'atelier de prétraitement (figure III.2) et avant d'être expédiés vers les laboratoires du CRNA.



**Figure III.2** : ① roche de phosphate, ② machine de concassage, ③ broyage, ④ tamisage

Les différentes machines utilisées sont identifiées dans la figure III. 2. Au niveau du CRNA, les échantillons sont séchés dans un four à une température de 110 °C pendant 24 heures afin d'éliminer l'humidité. Après le séchage les échantillons ont été broyés et tamisés à 2 mm, pour éliminer les particules de tailles supérieures. Le matériel utilisé dans la préparation des échantillons est présenté dans la Figure (III.3) :



**Figure III.3 :** Matériels utilisés pour la préparation des échantillons

Après homogénéisation, une quantité de chaque échantillon (éch1 m=129.24g, éch2 m=187.62g, éch3 m=170.96g) a été conditionnée dans des portes échantillons (boîte pétrie) (Figure III.4).



**Figure III.4 :** Conditionnement des échantillons.

Ces boîtes ont été pesées, scellées et stockés durant une période de 35 jours (~ 10 fois la période) pour assurer l'équilibre séculaire.

### III.3. Analyse spectrométrique

#### III.3.1. Instrumentation

Le détecteur utilisé est un modèle de détecteur Ge(HP) coaxial de type p, GX-3519, fabriqué par Canberra et est généralement utilisé pour l'analyse spectrométrique gamma de routine dans le laboratoire environnemental (figure III.5).



**Figure III.5** : La chaîne de spectrométrie gamma avec un détecteur à semi-conducteur Ge (HP)

Le détecteur a une efficacité relative de 35%, et une résolution de 1,8 (keV) pour le rayon gamma  $^{60}\text{Co}$  à 1332 (keV). Le détecteur est entouré de blindages en plomb de 100 mm d'épaisseur (Canberra 747 Series Lead Shield), avec des revêtements de 1 (mm) d'étain et 1,6 (mm) de cuivre pour réduire la contribution des rayons X du plomb au spectre, le blindage garantit l'obtention d'un bruit de fond faible nécessaire aux mesures de la radioactivité environnementale (Canberra Industries, 2008b). Le détecteur est connecté au DSA-XL Canberra (Digital Signal Analyzer) qui assure toutes les tâches électroniques conventionnelles associées, comme l'amplificateur, l'analyseur multicanal et l'alimentation haute tension. De manière à améliorer la résolution du détecteur, celui-ci doit être refroidi, ce qui diminue l'agitation thermique des porteurs de charges. Le détecteur est maintenu sous azote liquide durant la manip. Tous les équipements sont gérés par le logiciel Genie2000 (Canberra industries/Mirion Technologies, 2000).

#### III.3.2. Etalonnage de la chaîne de mesures

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



détection (analyse quantitative) [41]. La source étalon émettrice gamma utilisée pour la calibration en énergie est une source mixte contenant 10 radioéléments avec des activités bien définis.

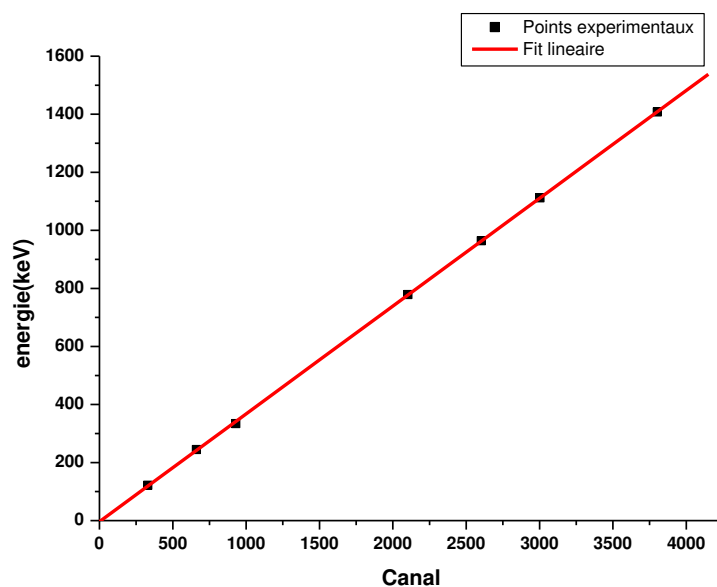
### III.3.2.1. Etalonnage en énergie

La première étape du travail avant toutes mesures, est la calibration en énergie de la chaîne de spectrométrie gamma. Dans cette étude en utilisant une source radioactive ponctuelle dont leurs énergies gammas sont bien connues. La chaîne de spectrométrie utilisée a été étalonnée à l'aide d'une source d' $^{152}\text{Eu}$ . Le spectre gamma a été collecté durant un temps de **500**secondes. Ainsi, le tableau (III.2) représenter les valeurs des énergies et des canaux.

E (keV)	Canal
121,78	330
244,66	661
344,31	930
778,87	2103
964,01	2603
1112,04	3003
1408,02	3803

**Tableau III.2** : Les valeurs des énergies et des canaux d'euporium-152

La courbe d'étalonnage est représentée sur la figure III.6 ci-après.



**Figure III.6** : droite d'étalonnage de la source d'euporium-152.

Cette calibration en énergie consiste à déterminer la droite de l'énergie en fonction du numéro du canal.

L'équation du premier ordre de l'étalonnage en l'énergie peut décrire correctement les données.

On aura ainsi :

$$E = 0.37 C - 3.454 \quad (\text{III.1})$$

### III.3.2.2 Etalonnage en efficacité

Pour établir la relation entre l'efficacité et l'énergie, il est nécessaire d'acquérir un spectre calibré en énergie des sources radioactives standards connues, pendant un temps suffisamment long pour obtenir des pics avec une petite incertitude. Le but de l'étalonnage en efficacité du détecteur est d'établir le rapport entre l'aire nette du pic de radionucléide d'intérêt et sa concentration d'activité dans l'échantillon mesuré.

$$\varepsilon = \frac{N/t_c}{A*\gamma} \quad (\text{III.2})$$

Où :

$\varepsilon$ : Efficacité du détecteur ;

$N$  : Intensité du pic d'absorption totale ;

$A$  : Activité de la source au temps de mesure ;

$\gamma$ : Rapport d'embranchement ;

$t_c$  : Temps de collection

L'erreur sur l'efficacité mesurée est calculée à partir de la loi de propagation des erreurs. L'incertitude sur la mesure de l'efficacité du détecteur est donnée par la relation suivante :

$$\frac{\Delta\varepsilon}{\varepsilon} = \left[ \left( \frac{\Delta N}{N} \right)^2 + \left( \frac{\Delta A}{A} \right)^2 + \left( \frac{\Delta\gamma}{\gamma} \right)^2 + \left( \frac{\Delta t_c}{t_c} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (\text{III.3})$$

Avec :

$\Delta N$  : Erreur sur l'intensité du pic d'absorption

$\Delta A = 0.05$  : Erreur sur l'activité de la source ;

$\Delta\gamma = 0.01$  : Erreur sur le rapport d'embranchement ;

$\Delta t_c$  : Erreur sur le temps de collection (négligeable).

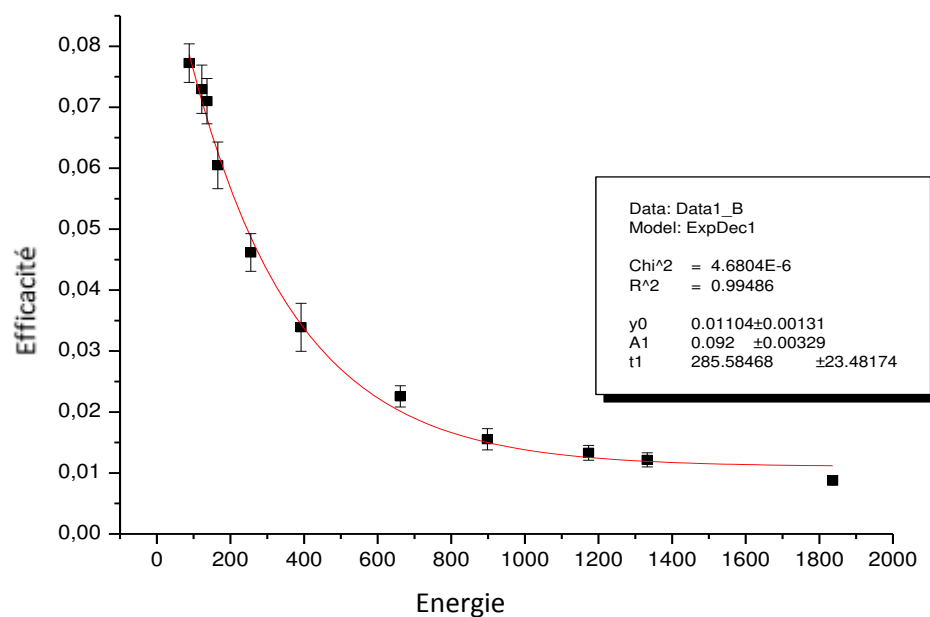
La première mesure consiste à déterminer l'efficacité du détecteur en utilisant une source mixte. Une quantité de cette source ( $m=18.5$  g) est mélangée dans une matrice de phosphate et mesurée pendant 3000s. Cette matrice a été préparée dans une boîte cylindrique (boîte pétrie). A partir

du spectre des raies gamma obtenu, l'efficacité absolue est calculée pour chaque pic d'énergie en utilisant l'équation (III.2). Les résultats sont indiqués dans le tableau III.3.

Element	Energie (keV)	T <sub>1/2</sub> (jour)	A <sub>s</sub> (t) (Bq)	Y%	ε (%)
<sup>241</sup> Am	59.84	158007.15	2349,9	36%	6.19 ± 0.32
<sup>109</sup> Cd	88	461.9	7763,8	3,63%	7.72 ± 0.40
<sup>57</sup> Co	122.06	271.81	569,3	85,51%	7.29 ± 0.37
<sup>57</sup> Co	136.4472	271.81	569,3	10,71%	7.1 ± 0.38
<sup>139</sup> Ce	165.8575	137.641	636,3	79,90%	6.05 ± 0.31
<sup>113</sup> Sn	255.17	115.09	770,6	2,11%	4.62 ± 0.39
<sup>51</sup> Cr	320.08	27.704	774,02	9,87%	3.01 ± 0.17
<sup>113</sup> Sn	391.698	115.09	770,59	64,97%	3.39 ± 0.17
<sup>85</sup> Sr	514.0048	64.85	717,29	98,50%	2.37 ± 0.12
<sup>137</sup> Cs	661.657	10975.76	1175,73	84,99%	2.26 ± 0.11
<sup>88</sup> Y	898.04	106.63	1865,84	93,90%	1.55 ± 0.08
<sup>60</sup> Co	1173,23	1925,327	1383,14	99,85%	1.33 ± 0.07
<sup>60</sup> Co	1332,492	1925,327	1383,14	99,98%	1.21 ± 0.06
<sup>88</sup> Y	1836,063	106,63	1865,84	99,32%	0.88 ± 0.05

**Tableau III.3** : caractéristiques expérimentales de la source mixte, et les valeurs d'efficacité

Par la suite, ces valeurs ont été ploté sur ORIGIN afin d'obtenir une courbe de variation de l'efficacité en fonction de l'énergie (voir figure III.7).



**Figure III. 7** : Courbe d'efficacité expérimentale du détecteur (mixed source) en fonction de l'énergie

La courbe est un fit exponentiel de 1<sup>er</sup> ordre tel que l'équation sous la forme

$$\varepsilon = 0.011 + 0.092 e^{-\frac{E}{t}} \quad (\text{III.4})$$

La courbe représentative de l'efficacité en fonction de l'énergie représenté dans la figure (III-7), cette courbe est utilisée pour déterminer les efficacités des éléments inconnus tel que (K-40, Th-232, Ra-226) et ceci afin de calculé les activités de ces radionucléides présents dans l'échantillon. En effet, connaissant l'énergie du radionucléide en question on peut déduire la valeur de son efficacité de détection, à partir de la courbe, et la reporter dans l'expression de l'activité.

### III.3.3. Analyse quantitative

Le radionucléide  $^{40}\text{K}$ , est émetteur des rayons gamma qui peuvent être détectés directement à partir de la raie 1460,82 keV. Par contre le  $^{226}\text{Ra}$  et le  $^{232}\text{Th}$  ne sont pas émetteurs de rayons gamma.

Dans le cas de ces radionucléides non émetteurs de rayons gamma directs, on peut les déduire à partir de certains de leur descendants émetteurs gamma qui possèdent une probabilité d'émission gamma significative, à condition qu'ils soient capables d'entrer en équilibre avec leurs parents au cours d'une période temporelles raisonnable. L'activité du  $^{226}\text{Ra}$  sera déterminée à partir des raies 351.93 keV du  $^{214}\text{Pb}$  et 609.32 keV du  $^{214}\text{Bi}$ . Le  $^{232}\text{Th}$  est évalué par la raie 238.632 keV du  $^{212}\text{Pb}$  et 911.204 keV de  $^{228}\text{Ac}$ .

A partir de la courbe de la figure III.7 et l'équation III.4, les efficacités de ces radioéléments sont données dans le tableau III.4. Par la suite, les activités spécifiques des radioéléments dans les phosphates sont calculées à partir de la relation suivante :

$$A_s = \frac{N - N_b}{\varepsilon * t_c * \gamma * m} \quad (\text{III.5})$$

$A_s$  : Activité spécifique,  $N$  : surface nette du pic de l'échantillon,  $N_b$  : surface nette du pic du bruit de fond,  $t_c$  : Temps de comptage en seconde.,  $\gamma$  : Rapport d'embranchement,  $m$  : Masse de l'échantillon en (kg),  $\varepsilon$  : Efficacité pour une raie donnée.

Famille	Elément	Energie (keV)	Efficacité
Th-232	Ac-228	911,204	0,0145
	Pb-212	238,632	0,0495
K-40	K-40	1460,82	0,0106
Ra-226	Bi-214	609,32	0,0225
	Pb-214	351,9321	0,0378

**Tableau III.4 :** l'efficacité correspondante aux radioéléments et leurs descendants

L'erreur sur l'activité spécifique est déterminée par la formule suivante :

$$\delta_A = A_s \sqrt{\left(\frac{\Delta N}{N}\right)^2 + \left(\frac{\Delta m}{m}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \gamma}{\gamma}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \varepsilon}{\varepsilon}\right)^2} \quad (\text{III.6})$$

Les principales erreurs commises lors de l'analyse des échantillons des phosphates sont :

( $\Delta N$ ) : L'erreur sur l'intensité du pic d'absorption totale

( $\Delta m=0.01$ ) : L'erreur sur la masse de l'échantillon

( $\Delta \varepsilon$ ) : L'erreur sur l'efficacité du détecteur

( $\Delta \gamma=0.01$ ) : L'erreur sur le rapport d'embranchement.

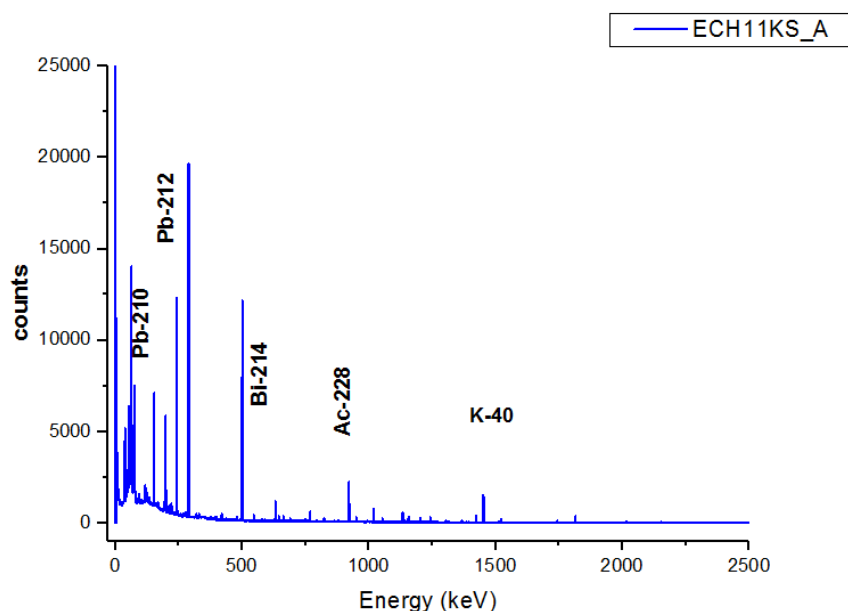
# **Chapitre IV**

## **Résultats et discussions**

Dans ce chapitre, nous allons présenter les résultats de mesures des activités spécifiques des radionucléides naturels présents dans les 3 échantillons de Phosphate collectés de gisement de Kef Essenoun ainsi que leurs impacts radiologiques sur la santé de travailleurs (miniers). Nous allons également comparer ces résultats aux normes mondiaux.

### IV.1. Mesure d'activité

Les échantillons de phosphate ont été placés sur le détecteur et les mesures est effectuées pendant 24h. L'acquisition et le traitement de données a été effectuée au moyen du logiciel Génie 2000. De ce fait, les résultats obtenus sont illustrés sur la figure IV.1 ci-après.



**Figure IV.1 :** Le spectre obtenu représente les pics d'absorption totale des différents radioéléments présents dans l'échantillon.

Les concentrations des activités de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  déduites à partir de leur descendant et celle du  $^{40}\text{K}$  présents dans les échantillons de phosphate étudiés sont données dans le tableau (IV.1).

Elément	Activité spécifique (Bq/Kg)		
	KS-01	KS-05	KS-07
<b>Pb-212</b>	18.3 ± 1.1	65.5 ± 3.7	2.1 ± 0.2
<b>Ac-228</b>	19 ± 2	79.4 ± 4.6	2.2 ± 0.6
<b>Th-232</b>	18.7 ± 1.5 *	73.9 ± 4.2 *	2.2 ± 0.4 *
<b>Pb-214</b>	134.9 ± 7.3	829.2 ± 43.9	162.5 ± 8.7
<b>Bi-214</b>	124.1 ± 6.8	773.9 ± 41.1	151.2 ± 8.1
<b>Ra-226</b>	129.5 ± 7 **	801.6 ± 42.5 **	156.8 ± 8.4 **
<b>K-40</b>	91.9 ± 6.1	53.9 ± 4.8	33.2 ± 2.5

\* la moyenne entre les deux concentrations (Pb-212 et Ac-228)

\*\* la moyenne entre les deux concentrations (Pb-214 et Bi-214)

**Tableau IV. 1** : Les activités spécifiques en (Bq.kg-1) des radionucléides naturels présents dans les échantillons de phosphate.

La concentration d'activité de Ra-226 varié de  $129.524 \pm 7.029$  Bq/Kg à  $801.558 \pm 42.529$  Bq/Kg avec une moyenne de  $362.639 \pm 19.328$  Bq/Kg. Le Th-232 varié de  $2.162 \pm 0.431$  Kg/Bq à  $73.955 \pm 4.171$  Kg/Bq avec une moyenne de  $31.59 \pm 2.031$  Bq/Kg. Tandis que pour le K-40 la concentration d'activité varié de  $33.158 \pm 2.505$  Bq/Kg à  $91.943 \pm 6.094$  Bq/Kg avec une valeur moyenne de  $59.67 \pm 4.467$  Bq/Kg.

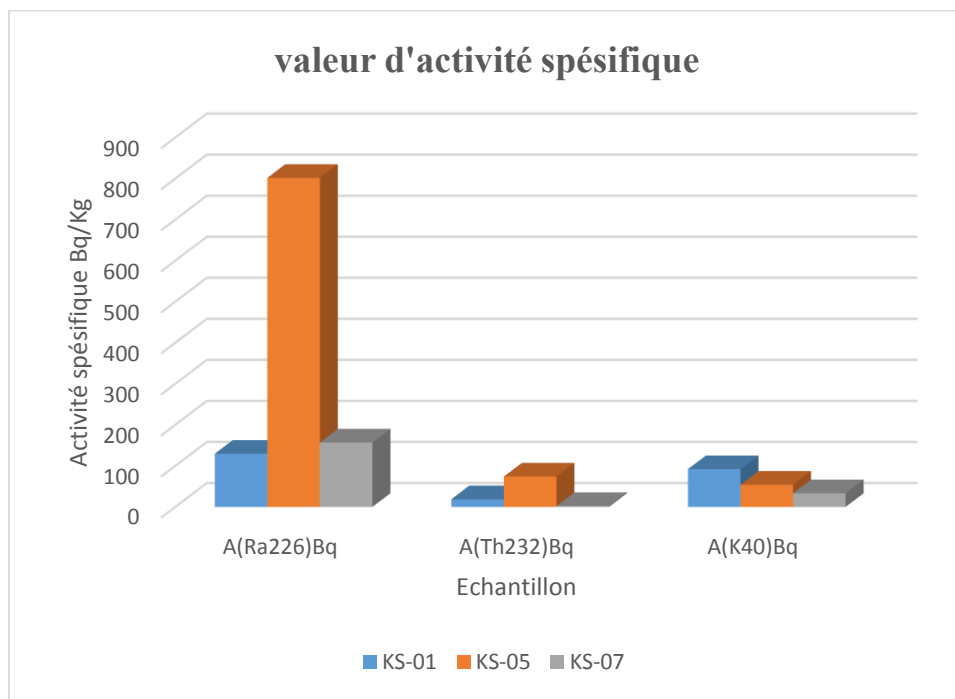
Radionucléides	UNSCEAR [14]
<sup>226</sup> Ra	35 Bq Kg <sup>-1</sup>
<sup>232</sup> Th	35 Bq Kg <sup>-1</sup>
<sup>40</sup> K	400 Bq Kg <sup>-1</sup>
	<b>Les moyenne dans notre étude</b>
<sup>226</sup> Ra	362.64 Bq Kg <sup>-1</sup>
<sup>232</sup> Th	31.59 Bq Kg <sup>-1</sup>
<sup>40</sup> K	59.67 Bq Kg <sup>-1</sup>

**Tableau IV.2** : comparaison de la valeur d'activité moyenne obtenu pour chaque radioélément avec les valeurs admissibles par l'UNSCEAR

Les résultats révèle que la concentration moyenne de Ra-226 est largement supérieure aux limites internationales indiquées dans le tableau IV.2, cela était vrai pour une les trois échantillons de phosphate. Contrairement aux résultats du Th-232 et K-40 qui étaient inférieure aux valeurs admissibles par l'UNSCEAR.



D'après l'histogramme de la figure IV.2, les activités mesurées des radionucléides diffèrent largement d'un point à un autre. Comme le montre le tableau IV. 1, l'échantillon KS-05 présente des niveaux d'activité trop élevés (car c'est une couche phosphatée) suivi du point KS-01.



**Figure IV.2 :** Les activités spécifiques de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  dans les échantillons étudiés.

Cette variation dépend de leurs propriétés physiques, chimiques et géochimiques et de l'environnement. Cette variation dans le niveau d'activité indique que les minéraux radioactifs sont distribués de façon irrégulière.

Country	$^{226}\text{Ra}$	$^{232}\text{Th}$	$^{40}\text{K}$
Maroc	1600	20	10
Soudan	2263	2,5	51,7
USA	1600	20	40
Togo	1100	30	4
<b>Présent travail</b>	<b>362.64</b>	<b>31.59</b>	<b>59.67</b>

**Tableau IV.3 :** Comparaison de la valeur d'activité moyenne en Bq/kg obtenu pour chaque radioélément avec les valeurs admissibles par l'UNSCEAR de quelque pays [42].

En comparant les valeurs moyennes mesurées de certains autres pays, on constate que la valeur de Ra-226 dans ce travail est inférieure aux valeurs mesurées :

De 1600 Bq / kg dans le gisement du Maroc et de l'USA 5 fois supérieur à la valeur de notre travail, 2263 Bq / kg en Soudan 6 fois supérieur à la valeur de notre travail, et 1100 Bq / kg dans la zone de Togo 3 fois supérieur à la valeur de notre travail. Les valeurs du Th-232 et K-40 étaient supérieures aux valeurs trouvées dans les pays précédemment cités.

## IV.2. Indice de risque

### IV.2.1. Evaluation de la dose

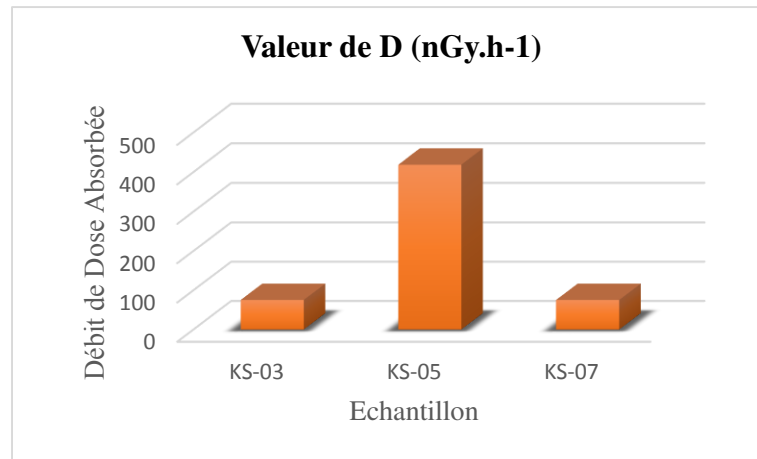
En radioprotection, ces doses doivent être quantifiées pour estimer le risque qu'elles apportent sur la santé des travailleurs. Dans cette étude, le débit de dose absorbée (ADR), l'équivalent de dose annuelle efficace (AEDE), l'équivalent de dose annuelle des gonades (AGDE) et L'excès de risque de cancer à vie (ELCR) ont été définies et calculées selon les relations montrées dans le chapitre I. Les résultats de ces calculs sont présentés dans le tableau (IV.4).

**Tableau IV.4.** Doses estimées pour les échantillons

	Gy.h <sup>-1</sup> )	E(mSv.y <sup>-1</sup> )	E (μSv.y <sup>-1</sup> )	R 10 <sup>-3</sup>
<b>KS-01</b>	75.2	0.09	507.1	0.32
<b>KS-05</b>	418.5	0.51	2802.9	1.8
<b>KS-07</b>	75.2	0.09	504.1	0.32
<b>Moyenne</b>	189.6	0.23	1271.3	0.81
<b>Moyenne mondiale</b>	84	0.08	300	0.29

#### IV.2.1.1. Débit de Dose Absorbée (AEDR)

Le débit de dose absorbée a été défini dans le chapitre I et calculé à partir de la relation (I.16). Les résultats de ces débits sont présentés dans la figure (IV.3).

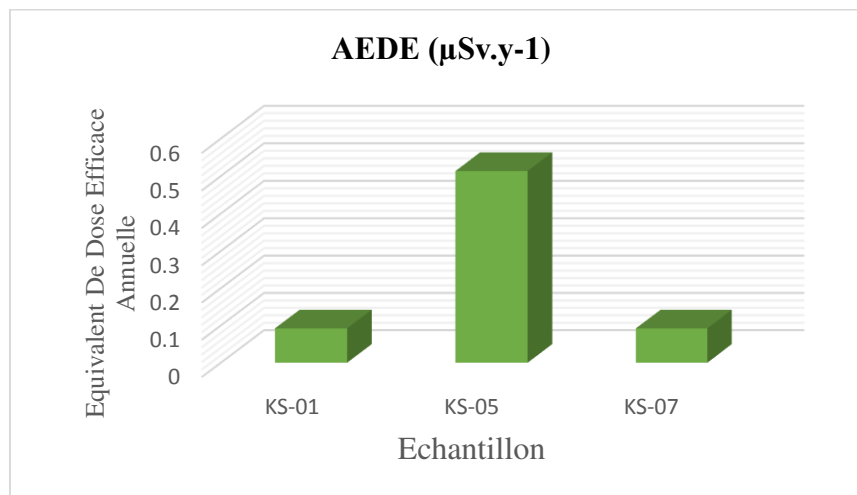


**Figure IV.3 :** Le débit de dose absorbée pour les 3 échantillon.

Ils varient de  $75.161 \text{ nGy.h}^{-1}$  à  $418.486 \text{ nGy.h}^{-1}$  avec une valeur moyenne de  $189.616 \text{ nGy.h}^{-1}$ . Ces résultats obtenus sont inférieurs à la valeur limite de sécurité recommandée par l'UNSCEAR de  $84 \text{ nGy.h}^{-1}$ [7]sauf pour le KS-05.

#### IV.2.1.2. Équivalent de Dose Efficace Annuelle (AEDE)

L'équivalent de dose efficace annuelle a été défini dans le chapitre I et calculé à partir de la relation (I.17). Ces résultats sont présentés dans la figure (IV-4).

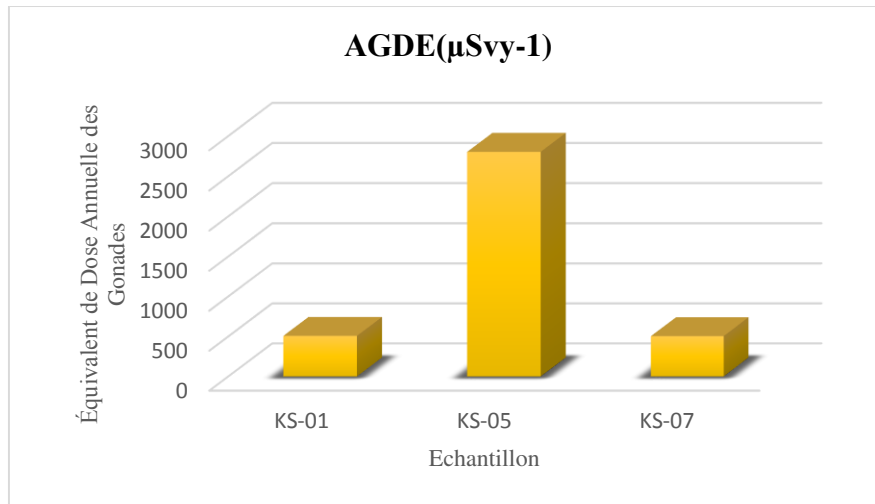


**Figure IV.4 :** L'équivalent de dose efficace annuelle (AEDE) pour les 3 échantillons.

Ils variant de  $0.092 \text{ mSv.y}^{-1}$  à  $0.513 \text{ mSv.y}^{-1}$  avec une moyenne de  $0.232 \text{ mSv.y}^{-1}$ . Ces résultats sont légèrement supérieurs dans le cas du KS-01 et KS-07 et largement supérieur dans KS-05 par rapport à la valeur recommandée de  $0.08 \text{ mSv.y}^{-1}$ [7].

### IV.2.1.3. Équivalent de Dose Annuelle des Gonades (AGDE)

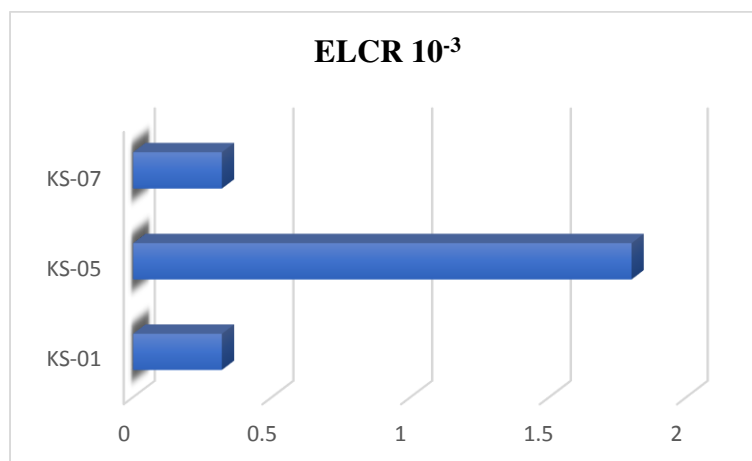
Les valeurs de l'équivalent de dose annuelle des gonades ont été calculées par l'équation (III.18). Ces résultats sont présentés dans la figure (IV.5). Ils sont variés de 504.071  $\mu\text{Sv.y}^{-1}$  à 2802.877  $\mu\text{Sv.y}^{-1}$  avec une valeur moyenne de 1271.339  $\mu\text{Sv.y}^{-1}$ . Les résultats obtenues dans cette étude sont supérieurs aux valeurs moyennes mondiales de 300  $\mu\text{Sv.y}^{-1}$ [43]



**Figure IV.5.** Équivalent de Dose Annuelle des Gonades (AGDE) pour les 3 échantillon

### IV.2.1.4 Excès de risque de cancer à vie (ELCR)

Cet indice a été calculé à partir de la formule (I.22). Les valeurs estimées d'excès de risque de cancer à vie pour les échantillons étudiés sont présentées dans la figure (IV-6).



**Figure IV.6 :** Excès de risque de cancer à vie (ELCR) pour les 3 échantillons de phosphate

Ils varient entre  $0.32 \cdot 10^{-3}$  à  $1.8 \cdot 10^{-3}$  avec une moyenne de  $0.81 \cdot 10^{-3}$ . Ces valeurs sont supérieures à la valeur admissible par l'UNSCEAR estimée de  $0.29 \cdot 10^{-3}$  [7]. KS-05 représente la valeur la plus importante de  $1.8 \cdot 10^{-3}$ .

## IV.2.2. Paramètres radiologiques

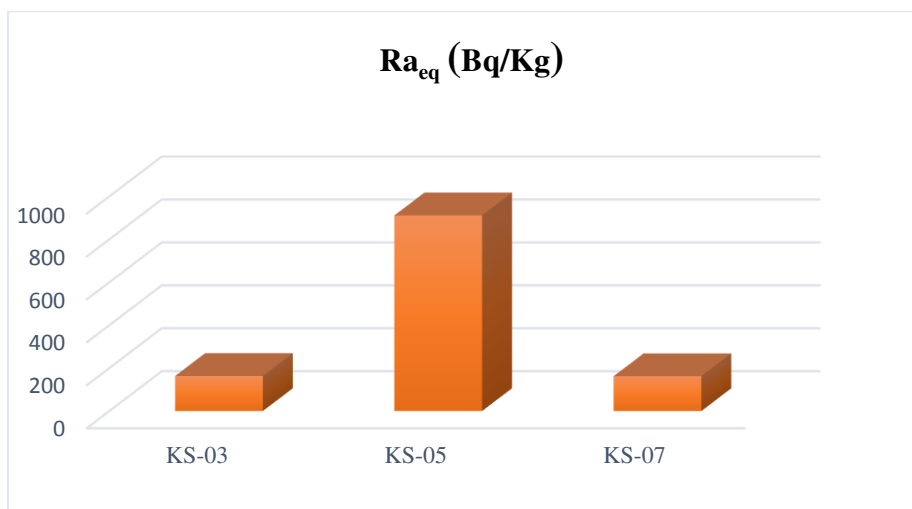
Les paramètres de risque radiologique tels que, le radium équivalent ( $R_{eq}$ ), les indices de risque externe et interne ( $H_{ex}$ ,  $H_{in}$ ) ont été également définis et calculés à partir des équations montrées dans le chapitre I. Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau (IV.5).

	$R_{eq}$ (Bq/Kg)	$H_{in}$	$H_{ex}$
<b>Ks-0.1</b>	163.278	0.791	0.441
<b>Ks-05</b>	911.466	4.629	2.463
<b>Ks-07</b>	162.481	0.863	0.439
<b>Moyenne</b>	412,408	2,094	1,114
<b>Moyenne mondiale</b>	370	1	1

**Tableau IV.5 :** Indices de risque radiologique calculés pour les 3 échantillons de phosphate

### IV.2.2.1. Radium équivalent ( $R_{eq}$ )

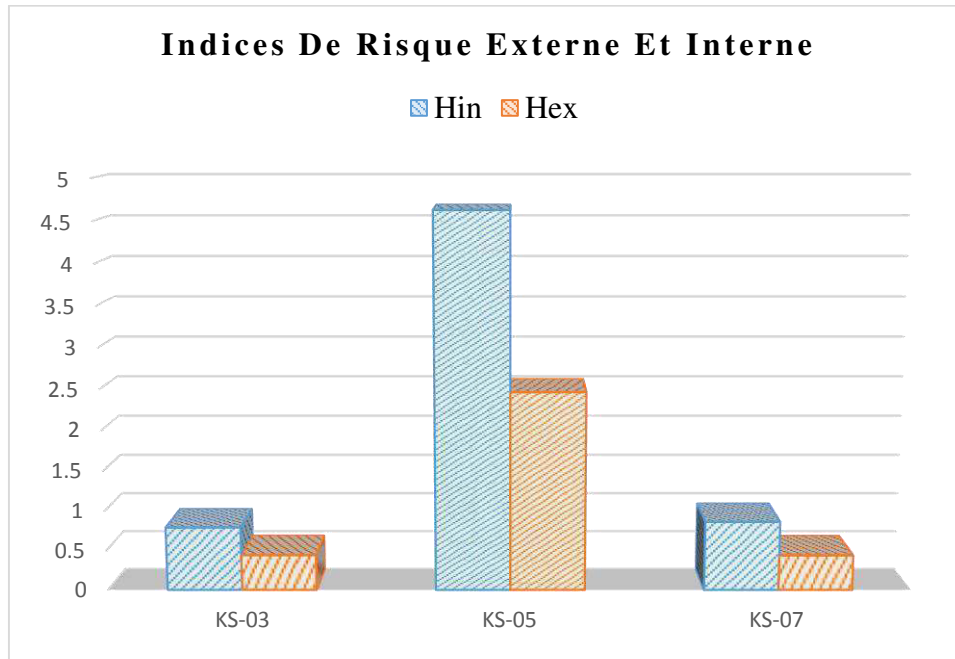
le radium équivalent a été calculé en utilisant la relation (I.19). Les valeurs estimées du radium équivalent sont indiquées dans la figure IV.7. Elles se situent entre 162.481 Bq/Kg et 911.466 Bq/Kg avec une valeur moyenne de 412,408 Bq/Kg. Les données obtenues dans cette étude sont inférieures à la valeur recommandée 370 Bq/Kg [44] sauf pour le point KS-05 qui est trouvé presque 2 fois supérieurs à la valeur admissible.



**Figure IV.7 :** Le radium équivalent ( $R_{eq}$ ) pour les 3 échantillons.

#### IV.2.2.2. Indices de risque externe et interne (Hin, Hin)

Ces deux indices permettent de vérifier si la dose de rayonnement maximum autorisée limitée à 1 mSv.y<sup>-1</sup> pour que le risque d'irradiation soit négligeable.



**Figure IV.8 :** Indices de risque externe et interne (Hin, Hex) pour les 3 échantillons

La valeur de l'indice de risque Hin et Hex varient de 0.791 à 4.629 et de 0.439 à 2.463 avec une valeur moyenne de 2.094 et de 1.114 respectivement. Les données obtenues dans cette étude sont supérieures à la valeur recommandée qui est l'unité.

# **Conclusion générale**

Ce travail était une partie qui vise l'établissement d'une base de données de niveau de référence de la radioactivité naturelle dans le gisement de phosphate de keff-Essenoun.

Trois échantillons de phosphates prélevés de différentes couches géologiques, ont été analysés à l'aide de la technique d'analyse par spectrométrie gamma composé principalement d'un détecteur à semi-conducteur de type germanium hyper pur.

Les résultats obtenus au cours de cette étude, à l'égard des trois échantillons étudiés, ont montrées une radioactivité comparable à celles mesurées dans les différents gisements du monde. Les valeurs moyennes obtenues dans notre travail, pour le  $^{226}\text{Ra}$ , le  $^{232}\text{Th}$  et le  $^{40}\text{K}$  dans les trois échantillons sont respectivement  $362.639 \pm 19.328$  Bq/Kg,  $31.59 \pm 2.031$  Bq/Kg et  $59.67 \pm 4.467$  Bq/Kg. Les concentrations de ces derniers dans le gisement de phosphate de keffEssenoun sont quantifier à être en dessus des valeurs admissible par l'UNSCEAR. Ces résultats peuvent être justifier par le fait que tout gisement de phosphate contient naturellement des radioéléments prédominants.

Pour mettre en évidence la relation de toutes ces Activité mesurées et leurs impact radiologique ; nous avons introduit les notions de dosimétrie et évaluation de risque des NORM sur les travailleurs des mines de phosphate. Les valeurs moyennes des Indices de risque, notamment ; Le débit de dose absorbée  $189.616 \text{ nGy.h}^{-1}$ , L'équivalent de dose efficace annuelle  $0.232 \text{ mSv.y}^{-1}$ , l'équivalent de dose annuelle des gonades  $1271.339 \mu\text{Sv.y}^{-1}$ , Excès de risque de cancer à vie  $0.81 \cdot 10^{-3}$ , le radium équivalent  $412,408 \text{ Bq/Kg}$ , Indices de risque externe et interne (Hex, Hin)  $2.094$  et  $1.114$  respectivement, sont en majorité en dessus des valeurs limites établies par « UNSCEAR », et comparable avec les valeurs obtenues dans d'autres gisements du Monde.

Le calcul du risque radiologique externe nous donne de croire que les travailleurs ne sont pas à l'abri du danger de cette radioactivité naturelle. Ces conclusions ne peuvent pas être généralisées vue le nombre insuffisant d'échantillons étudiés, une étude élargie sera nécessaire pour prédire la situation radiologique de Keff-Essenoun.

La vigilance sur ces valeurs de doses élevées permet de réduire ces risques radiologiques en appliquant les mesures de radioprotection appropriées.

En conclusion, Il ressort de cette étude que la technique de spectrométrie gamma à haute résolution à l'aide de Ge(HP) peut constituer un outil d'analyse performant pour effectuer des mesures environnementales. Cette technique non destructive et ne nécessitant pas de préparation radiochimique, permet de doser en une seule mesure l'ensemble des émetteurs gamma dans l'échantillon de phosphate.



Il est important de suivre l'étude et la caractérisation du bassin de djebel Onk afin de contribuer à l'établissement d'une cartographie en radioélément naturel et artificiels de cette région.

## Références

- [1] : PARADIS, H. (2016). DEVELOPPEMENT DE LA MESURE PAR SPECTROMETRIE GAMMA EN COÏNCIDENCE (DOCTORAL DISSERTATION, UNIVERSITE PARIS-SACLAY).
- [2] : CRESSIER, D. (2010). SYNTHÈSE ET ÉVALUATION DE NOUVEAUX DÉRIVÉS ORGANIQUES ET ORGANOMETALLIQUES CONTRE LES EFFETS DES RAYONNEMENTS IONISANTS (DOCTORAL DISSERTATION, UNIVERSITE DE TOULOUSE, UNIVERSITE TOULOUSE III-PAUL SABATIER).
- [3] : MINISTRE DE TRAVAUX PUBLICS ET SERVICES GOUVERNEMENTAUX CANADA (TPSGC). (2012). INTRODUCTION A LA DOSIMETRIE.
- [4] : NAGAI, J. (1969). ÉTUDE DES TRACES DE FISSION DANS LE ZIRCON: L'ÂGE, LA REPARTITION ET LA CONCENTRATION EN URANIUM. MEMOIRS OF THE FACULTY OF SCIENCE, KYOTO UNIVERSITY. SERIES OF GEOLOGY AND MINERALOGY, 35(2), 119-130.
- [5] : SAADI, E. (2020). ÉTUDE EXPERIMENTALE DE MESURES DE BASSES RADIOACTIVITES DANS LES MATERIAUX DE CONSTRUCTION UTILISES EN ALGERIE(DOCTORAL DISSERTATION, UNIVERSITE. FRERES MENTOURI CONSTANTINE 1).
- [6] : GUEMBOUSHOUOP, C. J. (2013). ETUDE DES ECHANTILLONS ENVIRONNEMENTAUX PAR SPECTROMETRIE GAMMA: CAS DES SOLS DES CAMPUS I ET II DE L'UNIVERSITE DE DOUALA (DOCTORAL DISSERTATION, UNIVERSITE DE DOUALA, DOUALA, CAMEROUN).
- [7] : UNSCEAR, "SOURCES AND EFFECTS OF IONIZING RADIATION," NEW YORK, 2000
- [8] : P. A. KARAM AND B. P. STEIN, RADIOACTIVITY. NEW YORK: CHELSEA HOUSE, 2009.
- [9] : BOUKHENFOUF, W. (2018). CONCENTRATION DE L'URANIUM: APPLICATION AUX FERTILISANTS AGRICOLES (DOCTORAL DISSERTATION).
- [10] : A. S. PASCHOA AND F. STEINHAUSLER, TECHNOLOGICALLY ENHANCED NATURAL RADIATION. UNITED KINGDOM: ELSEVIER LTD, 2010
- [11] : A-BOUREZAK « EVALUATION DE NIVEAU DE BASSE DU Cs-137 ET DU K-40 DANS L'EAU DE MER DE LA ZONE OUEST DU LITTORALE ALGEROIS ». 1998
- [12] : T. TCHAKOUA. ETUDE DE LA DISTRIBUTION DU CESIUM-137 DANS LE SOL PAR LA TECHNIQUE DE SPECTROMETRIE GAMMA : PAR LA METHODE MONTE CARLO. MINI PROJET DANS LE CADRE DES COURS SUPERIEURS EN RADIOPROTECTION ET SURETE DES SOURCE DE RAYONNEMENT IONISANTS, DEPARTEMENT GENIE DE L'ENVIRONNEMENT LABORATOIRE CRNA (2017).

[13] : ANDRE JOUVE, FLUX DES RADIONUCLEIDES DANS LES PRODUCTIONS AGRICOLES SUITE A UN ACCIDENT NUCLEAIRE : CONTRE – MESURES ET TECHNIQUES DE REHABILITATION, CEA (1997).

[14] : EUROPEAN COMMISSION (EC) RADIATION PROTECTION 112-RADIOLOGICAL PROTECTION PRINCIPLES CONCERNING THE NATURAL RADIOACTIVITY OF BUILDING MATERIALS DIRECTORATE- GENERAL ENVIRONMENT. NUCLEAR SAFETY AND CIVIL PROTECTION (1999).

[15] : L'UNSCEAR [UNSCEAR, "SOURCES, EFFECTS AND RISKS OF IONIZING RADIATION," NEW YORK, 1988.

[16] : J. H. ZAIDI, M. ARIF, S. AHMAD, I. FATIMA, AND I. H. QURESHI, "DETERMINATION OF NATURAL RADIOACTIVITY IN BUILDING MATERIALS USED IN THE RAWALPINDI / ISLAMABAD AREA BY G -RAY SPECTROMETRY AND INSTRUMENTAL NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS," APPL. RADIAT. ISOT., VOL. 51, PP. 559–564, 1999.

[17] : J. BERETKA AND P. J. MATHEW, "NATURAL RADIOACTIVITY OF AUSTRALIAN BUILDING MATERIALS, INDUSTRIAL WASTES AND BY-PRODUCTS," HEALTH PHYS., VOL. 48, NO. 1, PP. 87–95, 1985, DOI: 10.1097/00004032-198501000-00007.

[18] : KPEGLO DO, LAWLUVI H, FAANU A, AWUDU AR, DEATANYAH P, WOTORCHI SG, ARWUI CC, EMI-REYNOLDS G AND DARKO EO NATURAL RADIOACTIVITY AND ITS ASSOCIATED RADIOLOGICAL HAZARDS IN GHANAIAN CEMENT. RESEARCH JOURNAL OF ENVIRONMENTAL AND EARTH SCIENCES 3(2) : 161-167 (2011).

[19] : R. D. SENTHILKUMAR AND R. NARAYANASWAMY, "ASSESSMENT OF RADIOLOGICAL HAZARDS IN THE INDUSTRIAL EFFLUENT DISPOSED SOIL WITH STATISTICAL ANALYSES," J. RADIAT. RES. APPL. SCI., VOL. 9, NO. 4, PP. 449–456, 2016, DOI: 10.1016/J.JRRAS.2016.07.002.

[20] : G. BUONANNO, G. GIOVINCO, L. MORAWSKA, AND L. STABILE, "LUNG CANCER RISK OF AIRBORNE PARTICLES FOR ITALIAN POPULATION," ENVIRON. RES., VOL. 142, PP. 443–451, 2015, DOI: 10.1016/J.ENVRES.2015.07.019.

[21] : JIMONET, C., & METIVIER, H. (2012). PRINCIPES DE RADIOPROTECTION: REGLEMENTATION. EDP SCIENCES.

[22] : J . P. MORUCCI ET A. LANSIART ET J. L. MORETTI ET B. DANET ET R. GUIRAUD ET A. LEBLANC, LA DETECTION ET VISUALISATION DES RAYONNEMENTS EN MEDECINE NUCLEAIRE, MASSON (1982

[23] : RADIOPROTECTION ET INGENIERIE NUCLEAIRE. HENRI METIVIER, COORDINATEUR

[24] : COURTINE, F. (2007). ETALONNAGE D'UN SPECTROMETRE GAMMA EN VUE DE LA MESURE DE LA RADIOACTIVITE NATURELLE. MESURES EXPERIMENTALES ET MODELISATION PAR TECHNIQUES DE MONTE-CARLO (DOCTORAL DISSERTATION, UNIVERSITE BLAISE PASCAL-CLERMONT-FERRAND II

- [25] : AZZOZ A.H.1992. "MESURE DE RADIOACTIVITE A DES FINS DE SURVEILLANCE DE L'ENVIRONNEMENT ". RAPPORT CRS. R 023
- [26] : KOLL G.F., RADIATION DETECTION AND MEASUREMENT, 3EME EDITION, P 113-116, JOHN WILEY& SONS, 2000.
- [27] : AGENCE INTERNATIONALE DE L'ENERGIE ATOMIQUE, VIENNE(1995).COURS POST-UNIVERSITAIRE DERADIOPROTECTION VOLUME 1.
- [28] : MOUSOUS, O.(2013).CONTRIBUTION A L'AMELIORATION DE LA SENSIBILITE DE DOSIMETRE DE FRICKE (DOCTORAL DISSERTATION).
- [29] : BENOIT PIRARD, ETUDE ET VALIDATION D'UN SPECTROMETRE GAMMA POUR LA MESURE DE LA COMPOSITION CHIMIQUE DES SURFACES PLANETAIRES, (2006)
- [30] : AZLI, T. (2016). SIMULATION DE LA DETECTION DES RAYONNEMENTS GAMMA PAR UN DETECTEUR EN GERMANIUM (DOCTORAL DISSERTATION, UNIVERSITE FERHAT ABBAS).
- [31] : JACK L. PARKER, INSTRUMENTATION FOR GAMMA -RAY SPECTROSCOPY.
- [32] : GLENN F. KNOLL, "RADIATION DETECTION AND MEASUREMENT, THIRD EDITION" JOHN WILEY& SONS (2000).
- [33] : AZBOUCHE, A. (2015). DEVELOPPEMENT D'UNE METHODOLOGIE D'ANALYSE PAR SPECTROMETRIE GAMMA ET PAR ACTIVATION NEUTRONIQUE POUR L'ETUDE DE LA DISTRIBUTION DES RADIO-TRACEURS ET ES TERRES RARES DANS LE SOL (DOCTORAL DISSERTATION).
- [34] :G. BOUHILA.ÉTUDE DE LA REPARTITION DE RADIONUCLEIDES PRESENTS DANS LES LACS DE BARRAGES ARTIFICIELS. APPLICATIONS : BARRAGE DE BENI HAROUN. THESE DE DOCTORAT : PHYSIQUE DES RAYONNEMENT ET APPLICATION.UUNIVERSITE FERES MENTOURI .CONSTANTINE 1(2018)
- [35] : [CAN1] "DETECTOR BASICS", CANBERRA REFERENCE 1.
- [36] : G. LUTZ, « SEMICONDUCTOR RADIATION DETECTORS », SPRINGER, BERLIN (2001)
- [37] : « DETECTEURS SEMICONDUCTEURS », LA RADIOTECHNIQUE-COPRIM-RTC, VESOUL (1966)
- [38] :NADEGE BUFORN, FORCE DE CORIOLIS ET DEFORMATION NUCLEAIRE : RESULTATS DANS LES ISOTOPES DE CADMIUM ET DE PLOMB AVEC LE MULTIDETECTEUR Γ EUROBALL, UNIV. LYON I, (1992).
- [39] : FRANÇOIS- PHILIPPE HOCQUET, AMELIORATION D'UN SYSTEME PORTABLE DE SPECTROSCOPIE PAR FLUORESCENCE X, UNIV. DE LIEGE, (2006).
- [40] : DASSAMIOUR, M. (2012). ELEMENTS EN TRACES ET VALORISATION DES MINERAIS DE PHOSPHATE DU GISEMENT DE KEF ESSENNOUN-DJ. ONK (ALGERIE ORIENTALE) (DOCTORAL DISSERTATION, ANNABA).

[41] : S. KAIM, "DETERMINATION DES CARACTERISTIQUES DE DETECTEURS PAR SPECTROMETRIE GAMMA," MEMOIRE DE MAGISTER, UNIVERSITE MENTOURI CONSTANTINE, 2003.

[42] : KHATER, A. E., HIGGY, R. H., &PIMPL, M. (2001). RADIOLOGICAL IMPACTS OF NATURALRADIOACTIVITY IN ABU-TARTOR PHOSPHATE DEPOSITS, EGYPT. JOURNAL OF ENVIRONMENTALRADIOACTIVITY, 55(3), 255-267.

[43] :J. H. ZAIDI, M. ARIF, S. AHMAD, I. FATIMA, AND I. H. QURESHI, "DETERMINATION OF NATURALRADIOACTIVITY IN BUILDING MATERIALSUSED IN THE RAWALPINDI / ISLAMABAD AREA BY G -RAY SPECTROMETRY AND INSTRUMENTAL NEUTRON ACTIVATION ANALYSIS," APPL. RADIAT. ISOT., VOL. 51, PP. 559–564, 1999.

[44] : NEA, "EXPOSURE TO RADIATION FROM THE NATURALRADIOACTIVITY IN BUILDING MATERIALS," PARIS, 1979.

[45] : GAUCHER, D., THERRIEN, R., KETTAF, N., ANGERMANN, BR, BOUCHER, G., FILALI-MOUHIM, A., ... &SEKALY, RP (2008). LE VACCIN CONTRE LA FIEVRE JAUNE INDUIT DES REPNSES IMMUNITAIRES MULTILIGNEES ET POLYFONCTIONNELLES INTEGRES. LE JOURNAL DE MEDECINE EXPERIMENTALE , 205 (13), 3119-3131.