

République Algérienne Démocratique Et Populaire
Ministère De L'Enseignement Supérieur et de la recherche scientifique
Université Saad Dahleb Blida 1



Faculté des sciences
Département de physique
Mémoire de fin d'étude
Pour l'obtention du diplôme de Master en physique
Option : **Physique des Rayonnements**
Thème :

**MESURES DE L'ACTIVITE DES MATIERES RADIOACTIVES
NATURELLES (MRN) AU NIVEAU DES DIFFERENTS FILTRES DE
LA CIMENTERIE DE MAFTEH-ALGERIE**

Présenté par :

M^{LLE} BENKHAOUA AHLEM

M^{LLE} ZIGHA SABRINA

Soutenu le 30 / 09 / 2021, devant le jury composé de :

R.KHELIFI	Professeur	USDB1	Président
S.MAZIDI	Chercheur principal	CRND	Examineur
T.AZLI	Chercheur principal	CRND	Encadreur
F.ZIDOUNI	Professeur	USTHB	Co-Encadreur

Blida-1- 2020/2021

Remerciements

Nous remercions le dieu de m'avoir donnée la force, le courage, et la patience pour mener à bien ce modeste travail.

Ma haute considération s'adresse Mr AZLI Tarek, chercheur principal et responsable du laboratoire d'analyse par activation neutronique qui à accepté de nous encadrer et nous a suivie tout au long de cette expérience et à Madame ZIDOUNI Faiza, Professeur à l'université des Science et Technologie Houari Boumediene, d'avoir suivi ce travail avec beaucoup d'attention et de patience, je la remercie également pour son soutien moral, son aide et ses précieux conseils.

Mes remerciements vont de même à tout le personnel de la Cimenterie de Meftah en particulier monsieur Derradji Hamide, chef de département qualité.

Mes vifs sincères remercient à monsieur KHELIFI Rachid pour l'honneur qu'il ma fait en acceptant de présider ce jury.

Mes vifs remerciements à Mr MAZIDI Samir d'avoir accepté d'examiner et juger ce travail.

Mes remerciements vont :

*Aux enseignements de la spécialité physique des rayonnements.
A tout(es) mes amies(es) de physique des rayonnements (2020/2021).*

Dédicace

Je dédie ce modeste travail

A mes très chères parentes mon père et ma mère

Pour leur sacrifice, leur patience, leur amour, leur soutien, et leur encouragement

A mes sœurs et mes frères pour leurs soutiens moraux et matériels.

A toute ma famille Zigha

A mes chères amies : Ahlem, Rokaia, Amira

Ainsi qu'à tous ceux qui sont proches de mon cœur

A toute la promotion de Physique des Rayonnements



Sabrina



Dédicace

Je dédie ce modeste travail :

A mes chers parents

La source de mes efforts, celle qui n'a cessé de me soutenir et de m'encourager durant toutes les années de mes études, celle qui était présente à mes cotes pour me consoler quand il fallait, rien que pour toi maman, tous les mots du monde ne suffiront pas pour te remercier.

Mon père l'homme de ma vie qui a fait beaucoup pour moi, celui qui s'est toujours sacrifié pour me voir réussir, rien que pour toi papa.

Mes meilleurs frères Oussama et Riad et ses épouses

Sans oublier mes meilleurs amies Sabrina, Rakaia, Amira, Rania

Et Nihad

A tous mes amis, ainsi que mes collègues de master 2 de promo 2020-2021

Physique de rayonnement.

Merci à tous d'être toujours là pour moi

Ahlem.



Table des matières

Chapitres	Page
Remerciements	
Dédicace	
Résumé	
Table des matières	
Liste de figure	
Lise de tableau	
Abréviation	
Introduction générale	1
CHAPITRE 1 : Processus de fabrication du ciment dans la cimenterie de Meftah	
Introduction	3
Présentation du site	3
Composante du ciment	4
Processus de fabrication du ciment	4
Extraction	5
Concassage	5
Homogénéisation	6
Le broyage et séchage	6
Préchauffage et cuisson	7
Stockage du clinker, le broyage du ciment	7
Le stockage et les expéditions	8
Présentation fonctionnelle de filtre à manche	8
CHAPITRE 2 : Radioactivité naturelle	
Introduction	10
Désintégration radioactive	10
La radioactivité naturelle	10
Rayonnements cosmiques	10
Rayonnement terrestre	11
La radioactivité artificielle	11
Loi de décroissance radioactive	11
Désintégration multiple ou filiation radioactive	12
Cas d'équilibre séculaire	12
Cas d'équilibre transitoire	13
Cas non équilibre	13
Les séries de désintégration des radioéléments primordiaux naturels	14
Famille de l'uranium ^{238}U	14
La famille de thorium ^{232}Th	14
Conclusion	15
CHAPITRE 3 : Spectrométrie gamma	
Introduction	16
Les différentes techniques de mesure de MRNs	16
Les détecteurs gazeux	16

Analyses fines	16
Spectrométrie gamma	17
Analyse par activation neutronique NAA	18
Détecteur solide de trace nucléaire DSTN	18
Spectrométrie alpha	18
l'interaction du rayonnement gamma avec matière	19
L'effet photo-électrique	19
L'effet Compton	19
L'effet de création de pair	19
Principe de fonctionnement du Détecteur semi-conducteur de Ge HP	20
Présentation du détecteur utilisé	21
Présentation de la Chaîne de détection utilisée	22
Détecteur	22
Le préamplificateur	22
Amplificateur	22
Convertisseur analogique numérique	22
Analyseur multicanaux	22
Logiciel gamma vision	22
Etalonnage de chaîne de mesure	23
Etalonnage analogique	23
Etalonnage en énergie	23
Etalonnage en efficacité	23

CHAPITRE 4 : Mesure et analyse des résultats

Introduction	26
Prélèvement des échantillons	26
Préparation d'échantillons	26
Mesure du bruit de fond	27
Limite et seuil de détection	28
Analyse qualitative	29
Analyse quantitative	32
Mesure de l'activité des échantillons	32
Calcul de l'activité équivalente de ^{226}Ra	34
Mesure l'activité équivalente du radium	34
Indices de risque externe	34
Indices de risque interne	34
Débit de dose absorbée	34
Equivalent de dose effective annuelle(EDEA)	35
Conclusion Générale	36
Références bibliographiques	38

Liste de figure

- Figure 1.1 : La cimenterie de MEFTAH
- Figure 1.2 : Les matières premières de ciment
- Figure 1.3 : processus de fabrication de ciment
- Figure 1.4 : abattage et transport de calcaire
- Figure 1.5 : concassage de carrière
- Figure 1.6 : l'Atelier d'homogénéisation
- Figure 1.7 : Vue de l'usine de MEFTAH du côté où se fait le prés-broyage et le séchage
- Figure 1.8 : préchauffage et la cuisson de la farine
- Figure 1.9 : le broyage de ciment
- Figure 1.10 : filtre à manche
- Figure 2.1 : Courbe de décroissance radioactive
- Figure 2.2 : Evolution de l'activité des éléments dans le cas d'équilibre séculaire.
- Figure 2.3 : Evolution de l'activité des éléments dans le cas d'équilibre transitoire.
- Figure 2.4 : Evolution de l'activité des éléments dans le cas non équilibre.
- Figure 2.5 : Séries de désintégration de ^{238}U
- Figure 2.6 : Série de désintégration du ^{232}Th
- Figure 3.1 : Détecteurs utilisés en la spectrométrie gamma
- Figure 3.2 : Interactions principales des photons gamma avec la matière.
- Figure 3.3 : Les domaines de prédominance des interactions photons-matière en fonction du numéro atomique Z de la matière et de l'énergie des photons.
- Figure 3.4 : Structure de bande d'énergie d'un semi-conducteur tel que Ge Hp.
- Figure 3.5 : Détecteur Ge Hp du CRND
- Figure 3.6 : principaux composants de la chaîne d'acquisition de Ge Hp
- Figure 3.7 : Courbe de calibration en énergie
- Figure 3.8 : Courbe d'efficacité en fonction de l'énergie.
- Figure 4. 1 : Forme Marinelli des conteneurs des échantillons et le ruban de paraffine.
- Figure 4.2 : Spectre de bruit de fond (Eau des-ionisés) obtenu pour un comptage de 24heures.
- Figure 4.3 : Spectre de la Poussière de la farine crue.
- Figure 4.4 : Spectre de la Poussière de clinker.
- Figure 4.5 : Spectre de la Poussière de ciment.

Liste de tableau

Tableau 2.1 : Particules chargées composants le rayonnement cosmique

Tableau. 2.2 : Radioéléments source du rayonnement terrestres

Tableau 4.1 : Le comptage des différents échantillons et du bruit de fond pendant 24h

Tableau 4.2 : Limite détection (Bq/kg)

Tableau 4.3 : Le comptage des trois échantillons pendant 24h

Tableau 4.4 : Activité des radionucléides pour les trois échantillons

Tableau 4.5 : l'activité mesurée des radionucléid²²⁶Ra, ²³²Th et ⁴⁰K par échantillon

Tableau 4.6: Les activités équivalentes de Radium et les indices de risque radiologique des échantillons

Liste des abréviations

MCA	Analyseur Multicanaux
COMENA	Commissariat à l'Energie Atomique
CRND	Centre de Recherche Nucléaire de Draria
DSTN	Détecteur Solide de Trace Nucléaire
EDEA	Équivalent de Dose Effective Annuelle
Ge Hp	Germanium Hyper-pur
GICA	Groupe Industriel des Ciment d'Algérie
LD	Limite de détection
LMD/LOD	Limite de Detection / Limite of Detection
MNR/NORM	Matériaux Radioactifs Naturels / Naturally Occurring Radioactive Materials
NAA	Analyse par Activation Neutronique
SCMI	Société des Ciment de la Mitidja
UNSCEAR	United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation

Résumé

Le travail proposé dans ce mémoire porte sur la mesure de la radioactivité naturelle dans certains matériaux de construction (poussière de la cimenterie de Mafteh sise à la wilaya de Blida).L'objectif est de déterminer qualitativement et quantitativement leur radioactivité en utilisant la spectrométrie gamma haut résolution avec détecteur germanium hyper pur(HpGe). Nous avons constaté la présence des radioéléments suivants ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K dans les trois échantillons (poussière de ciment, poussière de la farine crue, poussière de clinker) au niveau d'un seul filtre à manche, l'analyse des échantillons à été effectuée au sein de laboratoire d'analyse par activation neutronique au CRND (Centre de Recherche Nucléaire de Draria).

Mots clés : Radioactivité naturelle, Spectrométrie gamma, GeHp, radionucléides.

Abstract

The work proposed in this thesis concerns the measurement of natural radioactivity in certain construction materials (dust from the Mafteh cement plant located in the wilaya of Blida). The objective is to determine qualitatively and quantitatively their radioactivity using spectrometry high resolution gamma with hyper pure germanium detector (HpGe). We observed the presence of the following radioelement's ^{238}U , ^{232}U and ^{40}K in the three samples (cement dust, raw flour dust, and clinker dust) at the level of a single bag filter, the analysis of the samples was carried out in a laboratory for analysis by neutron activation at the CRND (Draria Nuclear Research Center).

Keywords: natural radioactivity, Gamma spectrometry, GeHp, radionuclides.

ملخص

يتعلق العمل المقترح في هذه الرسالة بقياس النشاط الإشعاعي الطبيعي في بعض مواد البناء (الغبار من معمل الاسمنت لمفتاح الواقع في ولاية البليدة). الهدف هو تحديد نشاطها نوعيا و كميا باستخدام مقياس طيف جاما عالي الدقة مع كاشف الجرمانيوم عالي النقاء. لاحظنا وجود العناصر التالية في العينات الثلاث (غبار الإسمنت, غبار الدقيق الخام, غبار الكلنكر) على مستوى مرشح كيس واحد. تم تحليل العينات في معمل تحليل التنشيط النيوتروني في مركز البحث النووي بدرارية (CRND)

Introduction générale

La radioactivité est un phénomène naturel qui nous entoure et se trouve dans l'air, les plantes, l'eau, les roches. Les matériaux de construction. Elle se présente partout dans l'écorce terrestre avec des quantités différentes, dépendant à la fois de la nature de la terre et de la position géologique sur une zone géographique.

Les préoccupations concernant la présence de substance radioactive naturelle justifient des mesures sur les niveaux d'activité des radionucléides dans l'environnement et les évaluations de leurs impacts radiologiques sur la population humaine.

En effet, dans le cadre de la mesure de la radioactivité naturelle, plusieurs études et plusieurs techniques d'analyse sont mises en œuvre pour des études d'environnement. Dans le but de mesurer qualitativement et quantitativement les éléments radioactifs, principalement l' ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K dans les différents échantillons qui ont été étudiés.

Les travaux de ce mémoire s'inscrivent dans le cadre de la mesure de la radioactivité par spectrométrie gamma à l'aide de détecteur Germanium Hyper pur (Ge HP) pour certains matériaux de construction les plus couramment utilisés en Algérie, parmi ces matériaux on trouve les ciments qui sont des liants hydrauliques fabriqués à partir de clinker, obtenus par la combinaison chimique de calcaire et d'argile. Ils sont largement utilisés dans le domaine de bâtiment de construction. Est par conséquent, une grande partie des ouvriers travaillent quotidiennement dans des environnements poussiéreux de poussière de ciment qui est une poudre grise avec un diamètre allant de 0.05 à 5.0 mm. Cette taille est dans la gamme des tailles de particules respirables, et par conséquent, l'exposition à la poussière du ciment à longterm a été associée à des symptômes respiratoires et à divers degrés d'obstruction des voies respiratoires chez les personnes travaillant avec du ciment Portland.

La radioactivité naturelle issue de ciment contribue à la pollution de l'environnement. La contamination de l'homme peut se faire par exposition externe et interne.

L'exposition externe est causée par des rayonnements ionisants issus de ^{226}Ra , ^{234}Th et ^{40}K et de leurs descendants. L'exposition interne, affecte principalement les voies respiratoires, est due au descendant de courte durée de vie du ^{222}Rn lequel est produit par la désintégration du ^{226}Ra . En effet au cours de l'inhalation, une partie du ^{222}Rn se désintègre en ^{218}Po qui colle à la voie respiratoire et devient une source permanente de radioactivité interne.

Le travail engagé dans ce mémoire est de mesurer la radioactivité naturelle et la concentration des radionucléides naturels ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K dans certains matériaux de construction (poussière de ciment) situés à MEFTAH wilaya de Blida au nord de l'Algérie et d'évaluer ses impacts radiologiques sur la santé des travailleurs et des habitants en estimant la dose émise.

Pour parvenir à ces fins, le présent mémoire est structuré de la manière suivante :

Les techniques de fabrication de ciment, la composition chimique de la matière première et les modes de fabrication du ciment dans l'unité de MEFTAH sise à la wilaya de Blida sont présentées dans le premier chapitre.

Le deuxième chapitre est consacré à la présentation des notions fondamentales de la radioactivité naturelle, les chaînes de désintégration, ainsi que différents types de décroissance radioactive et leurs états d'équilibre, tenant compte de l'importance de la spectrométrie gamma.

Dans le troisième chapitre, nous présentons la spectrométrie gamma utilisée pour la mesure de l'activité de nos échantillons. Les différents composants de la chaîne de mesure, et la procédure de calibration de la spectrométrie en énergie et en efficacité sont également présentés.

La dernière partie porte sur la description de phase d'échantillonnage, ainsi que sur les différentes étapes de mesure de l'activité des radioéléments existant dans les échantillons. Les résultats d'analyse obtenus sont commentés.

Enfin, nous terminons ce mémoire par une conclusion qui rappelle les objectifs et les principaux résultats obtenus.

Processus de fabrication du ciment

Introduction

Dans la nature, il existe de la matière radioactive en quantité infinitésimale qui ne constitue pratiquement aucun danger pour l'environnement et l'être humain.

Le ciment est un produit largement utilisé dans le domaine de bâtiment. Il est pratiquement incorporé dans toutes les habitations. Il provient du schiste, du calcaire, de l'argile, du gypse et du sable. Pendant l'extraction, le broyage, la calcination et la filtration une grande quantité de poussière est libérée. Celle-ci peut contenir des matières radioactives telles que ^{226}Ra , ^{232}Th avec leurs descendants respectifs et ^{40}K . Avant de vérifier cet effet, on donne dans ce présent chapitre un aperçu du procédé de fabrication et la génération de la poussière dans les différents étages de production. Ce chapitre comporte également une brève présentation de la cimenterie de MEFTAHA.

1. Présentation du site

La SCMI est une entreprise Algérienne filiale du groupe GICA, spécialisée dans la fabrication du ciment. Elle est en partenariat avec Lafarge depuis juin 2008. Elle est située à 27 km au sud-est de la capitale Alger (Figure 1.1). Il s'agit de la première cimenterie industrielle de l'Algérie indépendante, réalisée en multi lots par des canadiens, avec une capacité nominale de production d'un million de tonnes par ans [1].



Figure 1.1 : Vue de la cimenterie de MEFTAHA.

2. Composants du ciment

Le ciment est fabriqué généralement à partir d'un mélange de calcaire(CaCO_3), l'argile ($\text{SiO}_2 - \text{AL}_2\text{O}_3$), le sable, minerais de fer et les deux ajouts le gypse et le calcaire. Ce mélange de matières est broyé à l'aide d'un concasseur et transporté jusqu'à la cimenterie. Le mélange résultant s'appelle 'le cru ' est ensuite envoyé dans un four rotatif où il est chauffé (environ $1450\text{ }^\circ\text{C}$) pour donner le clinker. Les granulés de clinker sont introduits dans le broyeur à boulet avec des ajouts de gypse de calcaire pour donner le produit final qui est le ciment.

Les matières premières, à l'exception de l'argile et du calcaire extraits sur le site, proviennent des régions suivantes, Figure 1.2 :

- Minerai de fer provient de la wilaya d'Ain DEFLA et d'ANINI de la wilaya de Sétif
- Sable : EPE SPA des wilayas de Boussaâda et de M'SILA
- Calcaire : Extraction de la carrière de MEFTAHA
- Argile : Extraction de la carrière de MEFTAHA
- Gypse : SCAL Médéa



Figure 1.2 : Les matières premières de ciment.

3. Processus de fabrication de ciment

La fabrication du ciment passe par plusieurs étapes. La figure 1.3 schématise le processus de fabrication. Les pilotes de salle de contrôle dirigent l'usine depuis leurs écrans où s'affichent toutes les informations. À chacune des étapes de la transformation de la matière, des échantillons sont automatiquement prélevés et analysés de façon très rigoureuse ce qui représente le contrôle de fabrication et le contrôle de qualité [2]. La fabrication du ciment traverse les étapes suivantes :

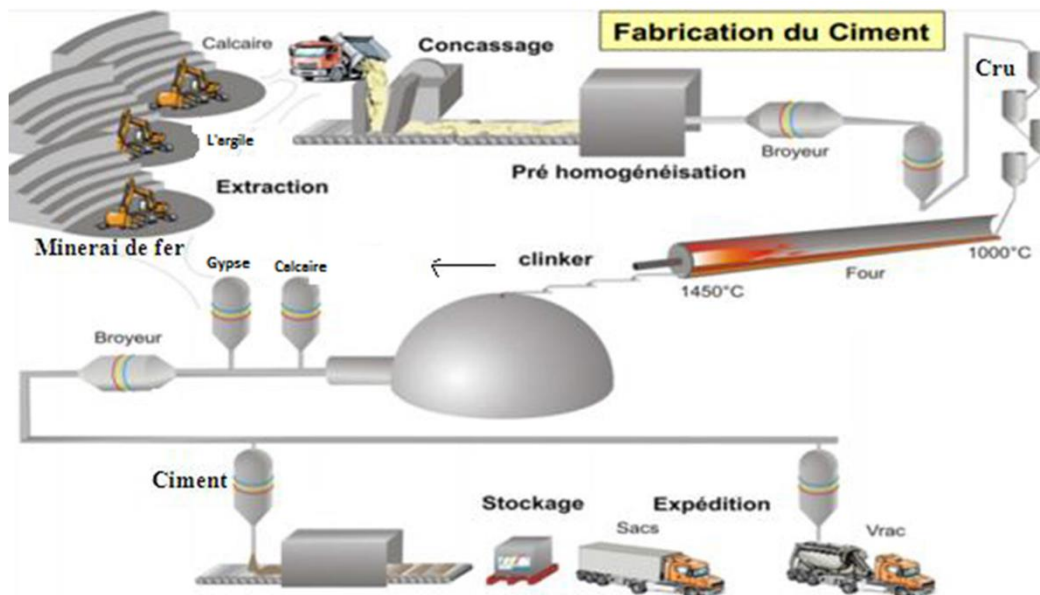


Figure1.3 : Processus de fabrication de ciment.

3.1. Extraction

L'extraction consiste pour le calcaire, à abattre la roche à l'explosif, dans des carrières à ciel ouvert, de façon à la fragmenter en blocs qui sont chargés ensuite dans des dumpers pour alimenter des concasseurs. Alors que l'argile, beaucoup plus meuble, est exploitée au moyen d'excavateurs ou de roue-pelle avant d'être transportée par camions, Figure1.4 ;



Figure 1.4 : Abattage et transport de calcaires.

3.2. Concassage

Les matériaux extraits des carrières (roche calcaires et argile) présentent des granulométries grossières allant jusqu' au m^3 . Le concassage, qui est effectué le plus souvent sur les lieux mêmes de l'extraction, a pour but d'en limiter la granulométrie à 50, voire 100 mm au maximum. Les concasseurs utilisés à cette fin peuvent être fixes ou mobiles, Figure 1.5.



Figure 1.5 : Concassage de carrière.

3.3. Homogénéisation

A cette étape, le produit sera mélangé dans les silos H1 et H2 pour être prêt au stockage, (Figure 1.6). La farine crue expédiée par l'air est dégagée dans la boîte de récupération, La capacité de stockage de chaque silo est de 10000 T .Chacun est équipé de deux sorties latérales pouvant assurer la totalité du débit de farines vers le four.



Figure 1.6 : Vue de l'Atelier d'homogénéisation.

3.4. Le broyage et séchage

Les matières première sont ensuite séchées et broyées très finement (Figure1.7) jusqu' à l'obtention d'une farine crue. Celle-ci sera ensuite introduite dans le four sous forme de poudre ou sera transformée en granulés.



Figure 1.7 : Vue de l'usine de MEFTAH du coté où se fait le prés-broyage et le séchage.

3.5. Préchauffage et cuisson

Avant l'introduction dans le four, la farine est chauffée à environ 800°C dans un préchauffeur à grille ou à cyclones. Le cru est ensuite cuit dans un four rotatif légèrement incliné dont les dimensions sont de l'ordre de 5m de diamètre et de 80 à 100m de longueur.

Le cru est introduit dans un four pour y être cuit à une température comprise entre 1400 et 1500°C . La cuisson, qui génère des émissions de CO_2 , permet la transformation du cru en clinker. Cette matière passe dans un refroidisseur, Figure 1.8.

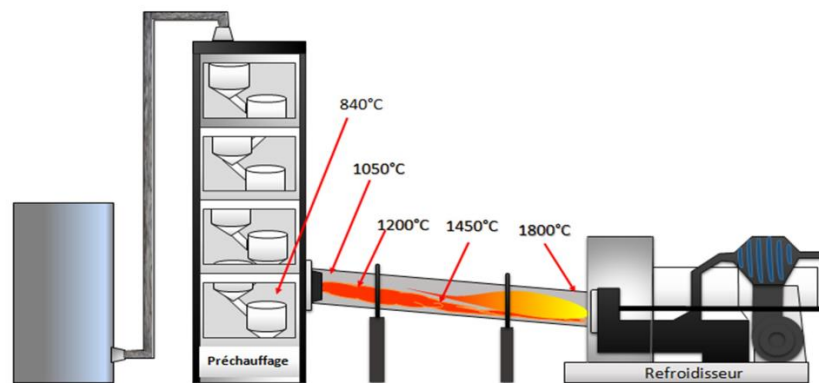


Figure 1.8 : Préchauffage et la cuisson de la farine.

3.6. Stockage du clinker, le broyage du ciment

Le clinker refroidi est stocké dans un hall couvert ou dans des silos, Il est broyé très finement dans broyeur à boulets avec d'autres ajouts de cendres de centrales thermiques et de gypse dont les pourcentages déterminent les différentes qualités de ciment Figure 1.9.



Figure 1.9 : Le broyage de ciment.

3.7. Le stockage et les expéditions

A partir de la sortie du broyeur, le ciment est transporté vers des silos de stockage, pour être soit ensaché (sac de 25kg ou 35kg) soit expédié en vrac. L'ensachage s'effectue dans des sacs en papier kraft à l'aide de machines capables de remplir 2000 à 4000 sacs par heure. La livraison en vrac est assurée par camions citernes, wagons ou péniches.

4. Présentation fonctionnelle du filtre à manche

Les systèmes industriels de production cimenterie sont caractérisés par une complexité importante. La fabrication du ciment nécessite des matières premières telles que l'argile et le calcaire, ces dernières passent par plusieurs étapes. Dans la filtration industrielle, on compte plusieurs filtres tels que le filtre à manche, l'électrofiltre et l'hemaza, par contre dans la cimenterie de Meftah, on utilise un seul système de filtration représenté par le filtre à manche.

Les filtres à manches sont des filtres employés dans la filtration industrielle. Ils font partie des techniques d'assainissement particulière de l'air ambiant en milieu industriel. Ils sont l'un des moyens les plus performants de séparer les poussières transportées par une veine d'air, collectée dans un conduit [1].



Figure 1.11 : Photo d'un filtre à manche à la cimenterie de Meftah.

Les avantages du filtre à manches sont nombreux, on peut citer :

- L'air ambiant est plus propre au poste de travail.
- L'efficacité des machines et appareils est augmenté.
- L'usure des machines ainsi que les arrêts de production diminuent.
- Le personnel se sent mieux, et diminue les risques de différentes maladies.
- Les marchandises restent propres et plus attractives sur les plan visuel [1].

Radioactivité naturelle

Introduction

La radioactivité est un phénomène naturel, elle a été découverte en 1896 par le physicien français Henri Becquerel. Il cherchait à savoir si les rayons émis par l'uranium étaient les mêmes que les rayons X. En mars 1896 à Paris, il a découvert que le film photographique avait été impressionné sans avoir été exposé à la lumière du soleil. Il en conclut que l'uranium émet spontanément des rayonnements invisibles différents des rayons X.

Un peu plus tard, Pierre et Marie Curie réussirent à séparer des éléments radioactifs comme le polonium et le radium donc le rayonnement résulte d'une transformation spontanée de noyaux atomiques instables d'un élément en un autre élément : c'est le phénomène de radioactivité. Celui-ci est observé avec 40 espèces atomiques naturelles dont la quasi-totalité a des nombres atomiques supérieurs à 8. Le samarium et le potassium sont l'exception de cette règle. La radioactivité peut être provoquée dans certains noyaux par bombardement des noyaux de ses éléments : la radioactivité ainsi observée est dite artificielle [3].

1. Désintégration radioactive

1.1 La radioactivité naturelle

On parle de radioactivité naturelle pour désigner la radioactivité due à des sources non produites par activités humaines. Ces sources sont divisées en deux types :

1.1.1 Les rayonnements cosmiques

Les rayonnements cosmiques ont des origines diverses et résultent principalement du soleil et d'autres phénomènes célestes extérieurs au système solaire dans l'univers. Ils sont principalement constitués de particules chargées, tableau 2.1. Une partie de ces rayonnements ionisants pénètre dans l'atmosphère terrestre et produit des réactions nucléaires avec les composants de l'atmosphère. Il en résulte des substances radioactives qui se dispersent dans l'environnement.

Tableau 2.1 : *Particules chargées composant le rayonnement cosmique.*

Particules	Taux (%)
Noyau d'hydrogène (protons)	85
Noyau d'hélium (particules alpha)	12.5
Noyau d'atomes plus lourds	1
Electrons	1.5

1.1.2 Les rayonnements terrestres

La croûte terrestre contient des radionucléides dits « primordiaux » présents depuis la création de la terre avec des périodes radioactives suffisamment longues devant l'âge de celle-ci pour y subsister en quantité importante (voir tableau ci-dessous), [4].

Tableau. 2.2 : *Radioéléments source du rayonnement terrestres*

Radionucléides primordiaux	Symbole	Demi-vie (années)
Uranium 235	^{235}U	$7,04 \cdot 10^8$
Uranium 238	^{238}U	$4,47 \cdot 10^9$
Thorium 232	^{232}Th	$1,41 \cdot 10^{10}$
Potassium 40	^{40}K	$1,28 \cdot 10^9$
Rubidium	^{87}Rb	$4,92 \times 10^{10}$
Lanthanum 87	^{138}La	$1,02 \times 10^{11}$
Samarium 147	^{147}Sm	$1,06 \times 10^{11}$
Lutétium 176	^{176}Lu	$3,78 \times 10^{10}$

Dans ce présent travail, on s'intéresse uniquement aux éléments les plus abondants tels que ^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K . Les autres éléments se trouvent à des proportions indétectables.

1.2 La radioactivité artificielle

La radioactivité artificielle est obtenue par la transformation des noyaux stables en noyau instables lesquels émettent, au bout d'un certain temps, des particules (électrons, alpha, ...) ou bien des rayonnements (photons) énergétiques. Cette transformation est obtenue par choc des particules projectiles plus souvent des protons, neutrons, noyaux d'hélium ou de deutérium sur des noyaux cibles.

2. Loi de Décroissance radioactive

Dans un échantillon de matière radioactive, le nombre de noyaux radioactifs décroît avec le temps t , et sera noté $N(t)$. Si N_0 le nombre de noyaux radioactifs présents initialement dans l'échantillon. On obtient donc :

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N \quad (2.1)$$

L'intégration donne :

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (2.2)$$

Avec : $N(t)$ le nombre d'atome à l'instant t ; $N(0) = N_0$: est le nombre d'atomes présent initialement ; λ : la constant de décroissance radioactive (s^{-1}) ; t : le temps de décroissance [5].

La période T ou temps de demi-vie $t_{1/2}$ est le temps nécessaire pour que la moitié de la substance radioactive initialement présente dans un échantillon se désintègre tel que :

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \approx \frac{0.693}{\lambda} \tag{2.3}$$

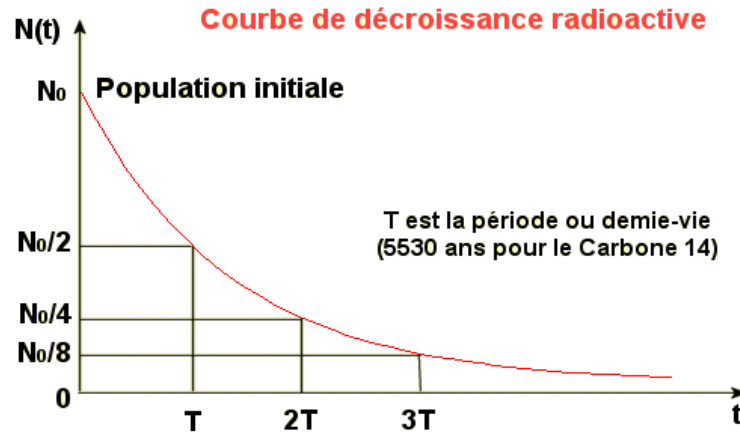
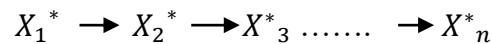


Figure 2.1 : Courbe de décroissance radioactive.

3. Désintégration multiple ou filiation radioactive

Une filiation radioactive (dite aussi série de décroissance radioactive ou encore décroissance multiple) est par définition la stabilisation d'un noyau appelé noyau père en une succession de désintégrations. Chaque étape est caractérisée par un état intermédiaire correspondant à un radionucléide appelé nucléide fils de l'élément père. Nous avons :



Où X^* désigne un isotope radioactif donné, X_n l'isotope stable de la filiation radioactive de l'élément père X_1^* [6].

Dans la nature, les filiations radioactives concernent principalement trois éléments lourds dont le temps de vie est de l'ordre du milliard d'années : l'uranium 238, l'uranium 235 et le Thorium 232. Les descendants de ces trois noyaux, présents en très petites quantités dans les roches, contribuent à la radioactivité naturelle. Selon la durée de vie des isotopes et leurs descendants, trois types d'équilibre peuvent s'établir entre les noyaux que l'on définit comme suit :

3.1. Cas d'équilibre séculaire

L'équilibre est dit séculaire quand la demi-vie du père est nettement plus grande que celle du fils, c'est à dire que l'activité du père est nettement plus faible que celle du fils, [7].

$$T_A \gg T_B, \lambda_A \ll \lambda_B$$

T_A : La demi-vie du radionucléide parent.

T_B : La demi-vie du radionucléide descendant.

Cet état est particulièrement important pour notre cas, il permet de déterminer l'activité du noyau père de longue période à travers l'activité des noyaux fils. On cite le cas de ^{238}U et son descendant le ^{222}Ra , un équilibre séculaire est atteint entre eux après 6 à 7 périodes du ^{222}Ra . A cet effet-là, nous attendrons 24 jours pour atteindre cet équilibre, la méthode est dite méthode de mesure indirecte.

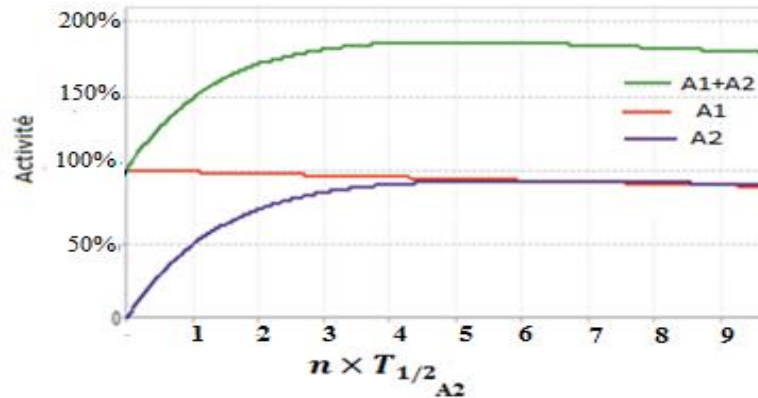


Figure 2.2 : Evolution de l'activité des éléments dans le cas d'équilibre séculaire.

2.2. Cas d'équilibre transitoire

Dans ce cas la demi-vie du noyau parent est légèrement plus longue que la demi-vie du descendant. L'activité du produit de désintégration du fils augmente pendant une période égale à environ deux fois sa demi-vie puis ces deux activités (père et fils) deviennent du même ordre de grandeur puis diminuent avec une allure similaire. $T_A > T_B$ [8].

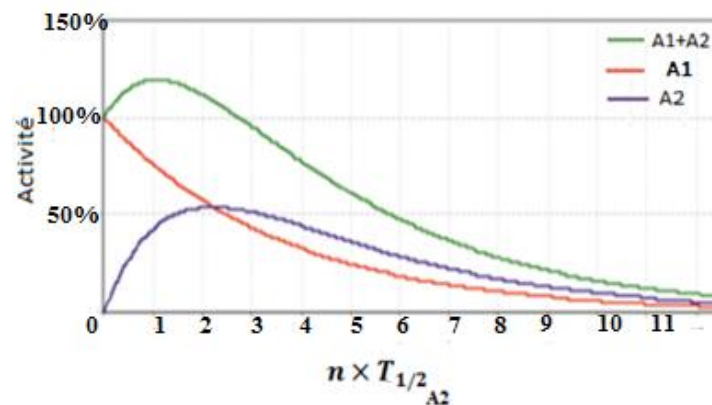


Figure 2.3 : Evolution de l'activité des éléments dans le cas d'équilibre transitoire.

3.2. Cas non équilibre

Lorsque la demi-vie T_A du nucléide parent est beaucoup plus courte que celle du descendant, $\lambda_A \gg \lambda_B$ [9], on aura alors :

$$N_B(t) = N_A(0) \frac{\lambda_A}{\lambda_A - \lambda_B} (e^{-\lambda_A t} - e^{-\lambda_B t}) \tag{2.4}$$

D'où :

$$N_B(t) = N_A(0) e^{-\lambda_B t} \tag{2.4}$$

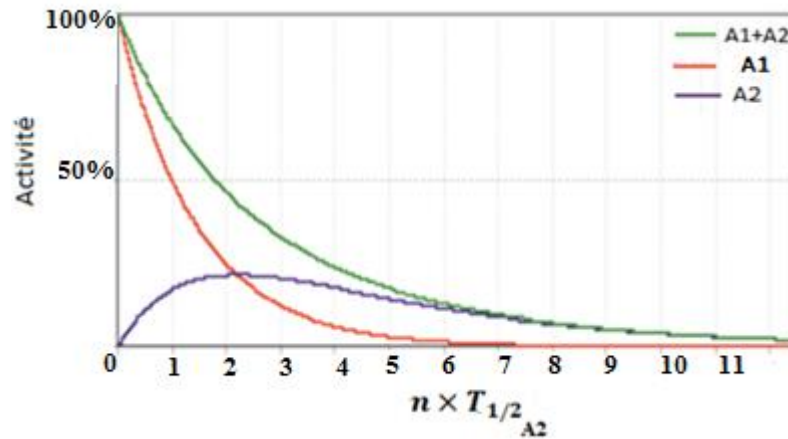


Figure 2.4 : Evolution de l'activité des éléments dans le cas non équilibré.

4. Les séries de désintégration des radioéléments primordiaux naturels

La désintégration d'un noyau peut conduire à son tour à un noyau instable soumis aux mêmes lois que le noyau initial et forme ainsi ce qu'on appelle chaîne de désintégration ou filiation radioactive [3]. Dans la suite et puisque notre étude est liée à la radioactivité naturelle relative aux filiations naturelle de l'uranium, du thorium, et du potassium 40, nous allons décrire brièvement ces filiations et les spécifier.

4.1 Famille de l'uranium-238

Le première radionucléide dans cette famille est l' ^{238}U qui à une $T_{1/2}$ égale à 4.5×10^9 ans et une abondance isotopique de 99.3% et elle se termine par le ^{206}Pb (stable), Figure 2.5.

4.2 Famille de thorium-232

Le premier élément de cette série est le ^{232}Th , dont la demi-vie est égale à $1,39 \times 10^{10}$ Ans. Tous les descendants du ^{232}Th figure 2.6, possèdent, comme lui, un nombre de masse égale a un multiple de 4.

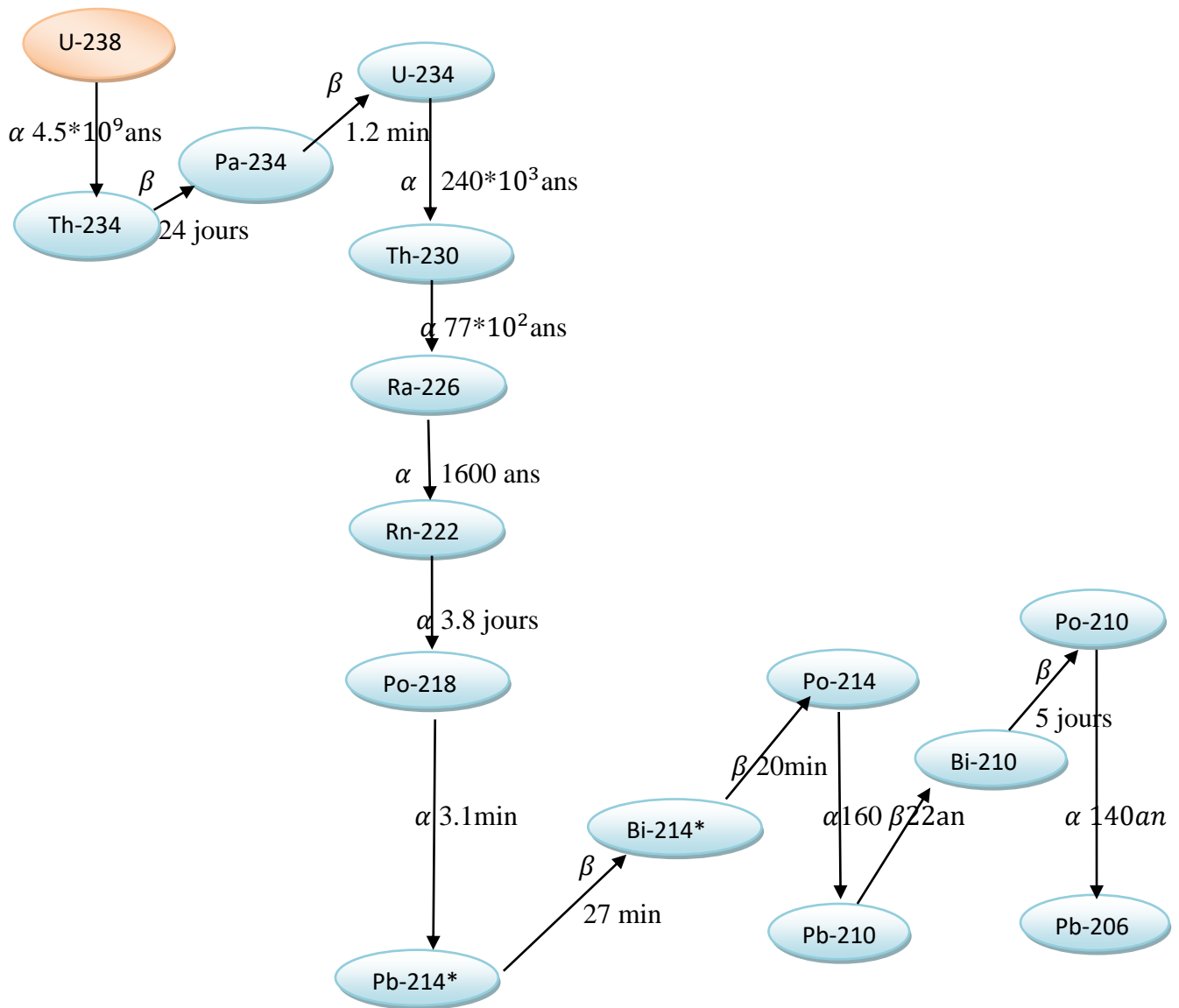


Figure 2.5 : Série de désintégration de ^{238}U .

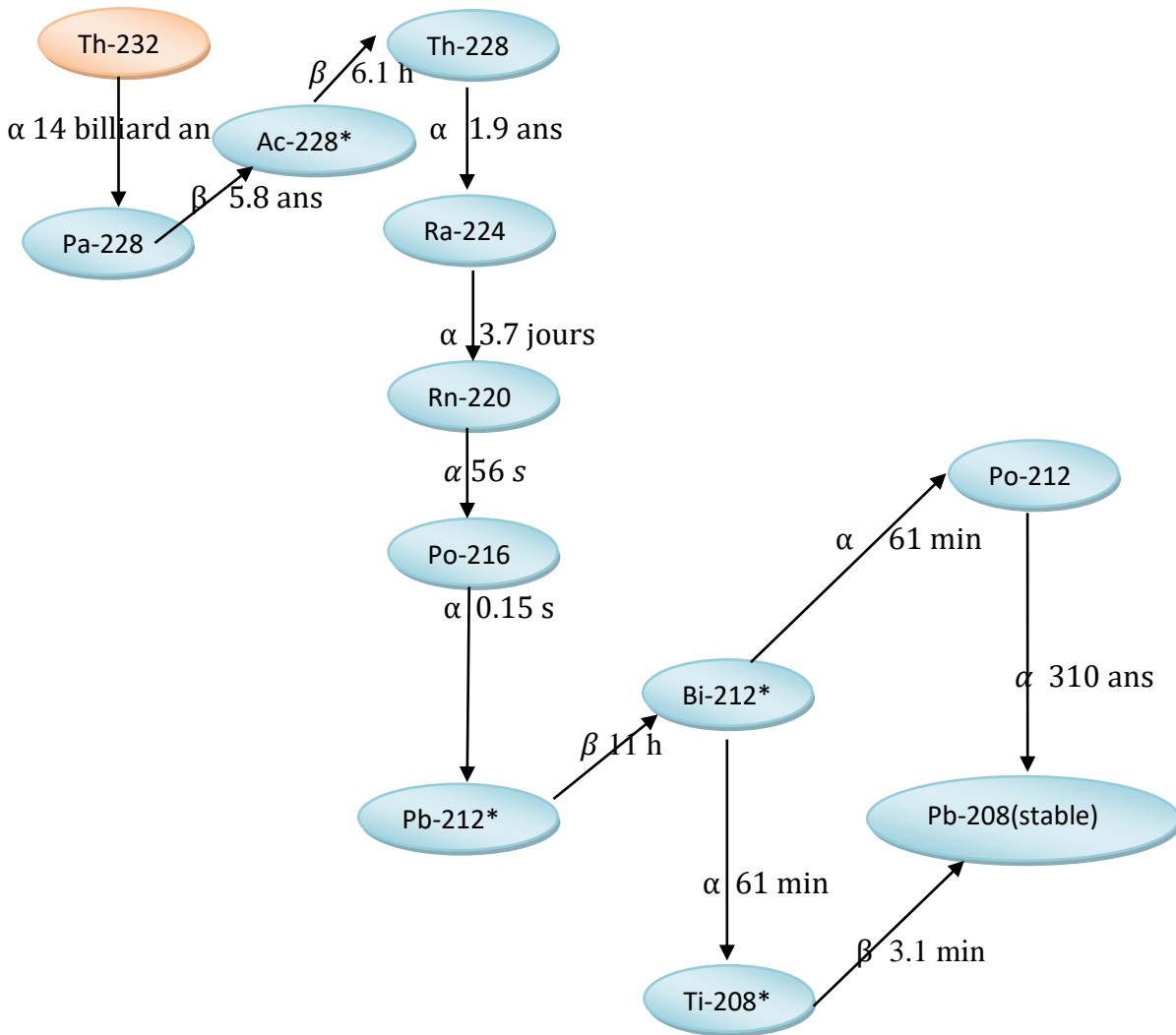


Figure 2.6 : Série de désintégration du ^{232}Th .

Conclusion

Dans le présent chapitre, nous avons expliqué le phénomène de la radioactivité et son évolution dans le temps. Nous avons ainsi mieux compris la filiation radioactive sur laquelle est basée la méthodologie de mesure adoptée tel que l'équilibre séculaire entre les descendants et les parents des radioéléments étudiés.

Spectrométrie Gamma et principe de mesure

Introduction

La spectrométrie gamma est une technique non destructive de mesure nucléaire très utilisée pour identifier et quantifier les éléments radioactifs par la mesure de l'énergie et du nombre des rayonnements gamma émis. La mesure de la radioactivité naturelle dans des différents échantillons de l'environnement s'effectue à travers des techniques variées qui peuvent être directes ou indirectes selon le but de la recherche ; ces techniques peuvent nécessiter une analyse qualitative et (ou) quantitative.

La détection d'un photon gamma est fondée sur les phénomènes d'interactions avec la matière, elle permet de mesurer un signal issu de l'interaction des rayonnements ionisants avec le cristal de germanium. C'est la raison pour laquelle ce chapitre regroupe à la fois les notions de base concernant l'interaction rayonnements-matière et celles qui concernent le principe de fonctionnement avec un détecteur semi-conducteur de Germanium Hyper pur (Ge Hp) au moyen duquel sont effectuées nos mesures.

1. Les différentes techniques des mesures des MRNs

La protection des populations et de l'environnement vis-à-vis des rayonnements ionisants nécessite la mesure et l'analyse de la faible radioactivité pour surveiller l'environnement et la santé publique.

1.1. Les détecteurs gazeux

Beaucoup de détecteurs en physique nucléaire sont basés sur l'utilisation d'un champ électrique permettant le comptage des électrons et ions formés par le passage d'une radiation dans le détecteur, tel que le compteur proportionnel ainsi que le détecteur Geiger Müller, et le détecteur thermoluminescent. Tous ses détecteurs sont basés sur un principe fondamental unique : le transfert d'une partie ou de la totalité de l'énergie de la particule incidente au détecteur ou elle est convertie en une autre forme mesurable.

1.2. Analyses fines

1.2.1. Spectrométrie gamma

La spectrométrie gamma, tout particulièrement à l'aide des cristaux de germanium hyper pur est l'une des plus puissantes techniques. Elle consiste à mesurer l'énergie et à compter le nombre de photon γ émis d'un échantillon pendant une durée donnée à partir de spectre enregistrée. Il est possible également d'identifier les différents radioéléments (analyse qualitative) et de déterminer leur concentration (analyse quantitative) dans l'échantillon étudié [10].



Figure 3.1 : Détecteur utilisé dans la spectrométrie gamma

1.2.2. Analyse par activation neutronique (NAA)

L'activation neutronique est une méthode analytique multi-élémentaire rapide, non destructive et très sensible, cette méthode d'analyse est qualitative et quantitative. Son principe consiste à irradier l'échantillon par un flux de neutron qui devient ainsi radioactif. Celui-ci est ensuite analysé en utilisant un détecteur approprié. Les échantillons qui se prêtent à une analyse grâce à cette méthode peuvent provenir de nombreux domaines, notamment de la médecine, de la biologie, de la chimie, de la médecine légale, de l'environnement et de l'exploitation minière [11].

1.2.3. Détecteur solide de trace nucléaire (DSTN)

Ce type de détecteur est utilisé pour la détection de Radon et ses descendants dans l'air qui peuvent être détectés par l'observation de traces nucléaires sur un film sensible tel que de CR39. Les zones de dommage créées le long des trajectoires de ces particules dans le matériau détecteur se fait avec microscope optique.

1.2.4. Spectrométrie alpha

La spectrométrie alpha est une technique d'analyse non destructive très précise dont l'objet est d'identifier et de quantifier les radioéléments naturelle et/ou artificiel. La méthode d'analyse consiste à mélanger l'échantillon à analyser avec un liquide scintillant. Les rayonnements issus de l'échantillon

excitent les molécules du scintillant, qui émettent alors un rayonnement lumineux détecté puis amplifié par un photomultiplicateur. La mesure par spectrométrie alpha est utilisée dans plusieurs domaines, à savoir :

- ✓ Détermination qualitative et quantitative des radionucléides émetteurs alpha dans des échantillons de l'environnement.
- ✓ Détermination qualitative et quantitative des radionucléides émetteurs alpha de la chaîne alimentaire [12].

2. Interaction du rayonnement gamma avec la matière

L'interaction des rayonnements gamma avec la matière se fait essentiellement par effet photo-électrique, effet Compton et effet de création de paires [13].

- **Effet photo-électrique** : Le photon cède toute son énergie à la matière en la transmettant à un électron du milieu.
- **Effet Compton** : Le photon diffuse sur un électron libre du milieu et lui cède une partie de son énergie.
- **Effet de création de paire** : le photon crée un électron et son antiparticule, le positon. Cette réaction ne peut avoir lieu qu'avec des photons d'énergie supérieure à 1022 KeV et dans le champ d'une particule chargée, la plupart du temps un noyau. Le positon va perdre de l'énergie puis s'annihiler avec un électron du milieu en donnant deux photons γ de 511 KeV chacun [14].

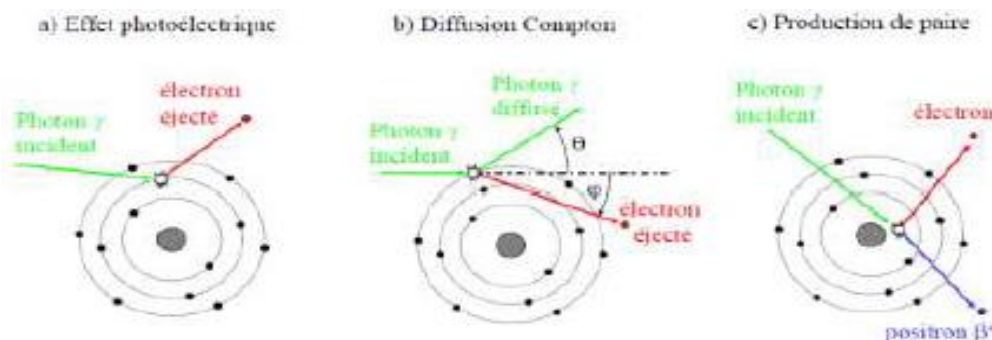


Figure 3.2 : Interactions principales des photons gamma avec la matière.

La Figure 3.3 montre la répartition de ces trois phénomènes en fonction de l'énergie. Les lignes de séparation représentent les couples de valeurs de Z et de l'énergie pour lesquelles deux effets sont égaux.

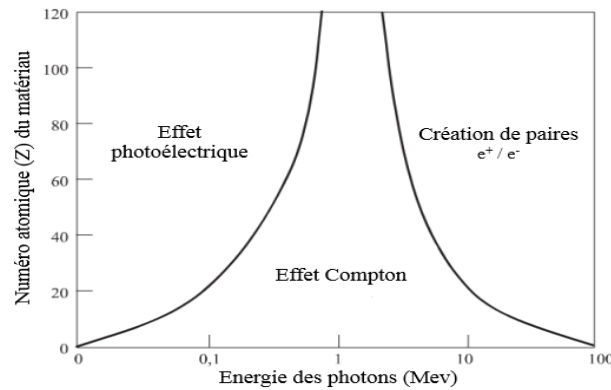


Figure 3.3 : Les domaines de prédominance des interactions photons-matière en fonction du numéro atomique Z de la matière et de l'énergie des photons.

3. Principe de fonctionnement du détecteur semi-conducteur Ge Hp

Le principe de détection d'un photon gamma repose sur la mesure de l'énergie qu'il a cédée (partiellement ou totalement) au matériau sensible via à des mécanismes d'ionisation considérés précédemment. Il existe plusieurs types de semi-conducteurs utilisées pour la détection du rayonnement gamma tel que Si, Cd-Te, Cd-Zn-Te ou As-Ga et Ge Hp. Nous nous intéresserons plus particulièrement au Germanium Hyper Pur (Ge HP) plus couramment utilisé. Il possède la bande interdite la plus étroite et permet de créer le plus grand nombre de porteur de charge pour un dépôt d'énergie donnée, et par conséquent il présente une excellente résolution en énergie [15].

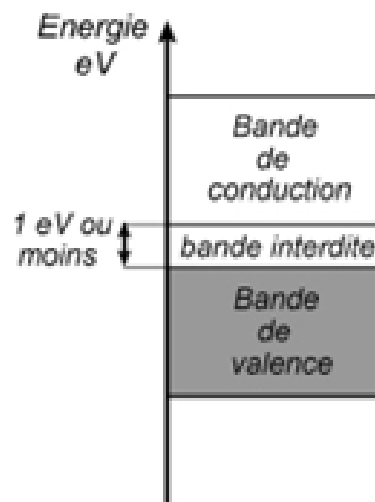


Figure 3.4 : Structure de bande d'énergie d'un semi-conducteur tel que Ge Hp.

Selon la théorie des bandes, les électrons des couches externes d'un cristal de germanium, pour le cas de GeHP se répartissent en deux bandes continues : la bande de valence et la bande de conduction, ces deux bandes sont séparées par une bande d'énergie interdite appelée Couramment par son équivalent anglais plus court "gap", voir Figure 3.4. Elle est de l'ordre de 0,75 eV pour le germanium à la température absolue (0 K).

A cause de la grande stabilité de la structure des semi-conducteurs intrinsèques, les déplacements de trous ou d'électrons sont rares. Pour améliorer leur conductivité, il est possible de créer un grand nombre d'électrons libres par le dopage de type N ou P [16].

Dans l'interaction des photons avec la matière quelque soit le processus initial, l'énergie incidente est transmise totalement ou partiellement à un électron du matériau du détecteur.

Les interactions successives de ce dernier créent dans le semi-conducteur un nombre de paires électron-trou (n), proportionnel à l'énergie initialement transférée E_γ .

La relation qui relie l'énergie initialement transférée et le nombre de paires électron-trou est la suivante :

$$n = \frac{E_\gamma}{\varepsilon} \quad (3.1)$$

ε : Energie moyenne nécessaire pour créer une paire, $\varepsilon = 2.96$ eV à 77K.

La collection de ces charges aux bornes du détecteur génère des impulsions électriques d'amplitudes proportionnelles à l'énergie des électrons primaires mis en mouvement, l'ensemble de ces informations constitue le spectre en énergie qui se caractérise en particulier par les pics d'absorption totale.

4. Présentation du détecteur utilisé

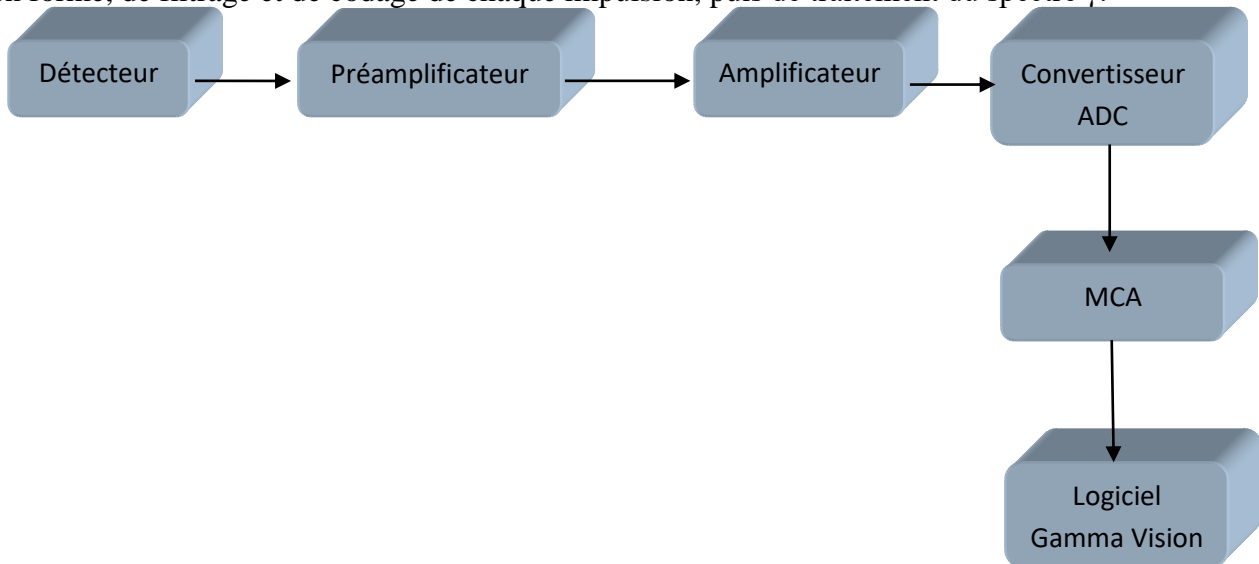
Le détecteur utilisé est disponible au CRND, Figure 3.5. Il s'agit d'un détecteur de type N model GR3019 de géométrie coaxiale et d'efficacité relative de 30 %, ayant un volume actif de 340 cm³ et un pouvoir de résolution égale à 1,9 keV pour le pic 1332 keV du ⁶⁰Co. Il est polarisé par une tension égale à -3500 V délivrée par un module haut tension de modèle 659 d'ORTEC. Le cristal Ge Hp est monté verticalement sur le cryostat à l'azote liquide à une température de 77°K. Les données spectrales du détecteur sont récoltées sur un analyseur multicanaux modèle DSA de 8192 canaux.

Un château de plomb de 100 mm d'épaisseur protège le détecteur du bruit de fond. Celui-ci est renforcé par une plaque de cuivre de haute pureté de 3 mm d'épaisseur pour réduire les rayons X de freinage (Bremsstrahlung) dû aux rayonnements Beta émis par l'échantillon lors du comptage [17].



Figure 3.5 : Détecteur Ge Hp du CRND**5. Présentation de la chaîne de détection utilisée**

Afin d'exploiter le signal délivré par le détecteur, celui-ci est suivi d'une chaîne de traitement électronique analogique ou numérique. La figure 3.6 représente une chaîne de spectrométrie analogique classique composée de plusieurs modules assurant des fonctions d'amplification, de mise en forme, de filtrage et de codage de chaque impulsion, puis de traitement du spectre γ .

**Figure 3.6** : Principaux composants de la chaîne d'acquisition de Ge Hp.

- Le détecteur : est un composant très sensible qui sert à convertir l'énergie (invisible) du rayonnement ionisant en un signal mesurable.
- Le préamplificateur : collecte les charges générées par l'interaction des photons dans le cristal Ge HP et assure l'adaptation d'impédance entre le détecteur et l'amplificateur.
- L'amplificateur : sert à la mise en forme du signal et à son amplification : le but est de minimiser le bruit et d'obtenir un signal gaussien.
- Convertisseur analogique-numérique : à la sortie de l'amplificateur, on a un signal continu, le convertisseur transforme l'amplitude du signal en un nombre qui est proportionnelle à l'énergie déposée dans le cristal.
- L'analyseur multicanaux : collecte, classe et enregistre les informations dans différents canaux ; chaque canal correspond à une énergie. Cela permet d'obtenir un histogramme en temps réel dans lequel l'énergie déposée dans le cristal est relié au numéro de canal et le nombre de coup dans un canal donné est proportionnelle aux nombres de photons ayant déposé la même énergie dans le cristal [18].

- Le logiciel Gamma Vision : est utilisé pour analyser et calibrer l'instrument. Il permet d'avoir un spectre avec le numéro de canal. Ce spectre représente le nombre de photons mesurés en fonction de leur énergie.

6. Etalonnage de la chaîne de mesure

6.1. Etalonnage analogique

A la sortie du détecteur la première calibration consiste à changer les paramètres du préamplificateur et de l'amplificateur afin d'obtenir un signal gaussien, qui est optimum car croît et décroît suffisamment rapidement ce qui permet d'éviter l'empilement de deux différents signaux. On peut aussi régler le temps d'occupation ou temps d'échantillonnage : durée pendant laquelle le signal est enregistré, s'il est trop court le signal risque de ne pas être pris dans son intégralité, si il est trop long il risque de prendre deux signaux en même temps [19].

6.2. Etalonnage en énergie

C'est une étape primordiale pour identifier tous les éléments radioactifs présents dans un échantillon à analyser. Elle consiste à identifier l'énergie du photon gamma à un numéro canal bien défini dans le MCA. Cet étalonnage nécessite l'utilisation d'un étalon dont on connaît les caractéristiques. Sur le spectre d'étalon, on relève le numéro du canal C qui représente un pic photoélectrique associé à l'énergie E correspondante (Figure 3.7) [20]. La relation obtenue est une droite linéaire, donnée par l'équation suivante :

$$E = aC + b \quad (3.2)$$

Où E : Energie (KeV), C : Numéro de canal. Les constantes : $a = 0.30 \text{ keV/C}$ et $b = -0.04 \text{ keV}$

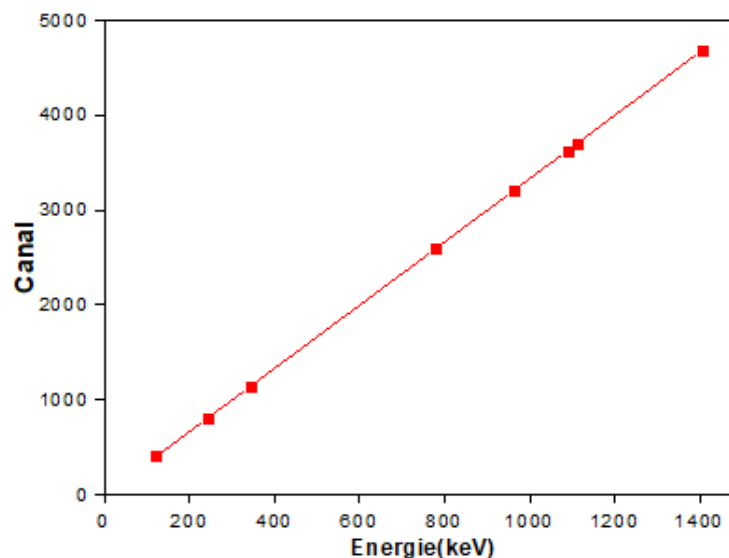


Figure 3.7 : Courbe de calibration en énergie.

6.3. Etalonnage en efficacité

L'étalonnage en efficacité consiste à déterminer une relation entre l'efficacité de détection et l'énergie correspondante. Pour établir un étalonnage en efficacité on doit utiliser des sources étalons qui sont de la nature et de forme semblables à celles de l'échantillon à analyser. Cette méthode nécessite de trouver une source étalon de même géométrie et de même composition que l'échantillon à analyser. Dans notre cas, il est presque impossible de la trouver car les matrices des échantillons de poussière prélevés sont très diversifiées. En effet lorsque les échantillons sont différents de l'étalon, il est nécessaire de corriger l'efficacité pour tenir compte de :

- ✓ Correction de la décroissance radioactive
- ✓ Correction d'auto-atténuation dans l'échantillon
- ✓ Correction des coïncidences des pics sommes

Afin de s'affranchir des difficultés expérimentales de l'étalonnage en efficacité dû au manque de sources étalons de même géométrie, le laboratoire d'analyse par activation neutronique du CRND utilise le code MCNPX qui, après validation expérimentale du modèle, permet de donner la courbe d'efficacité (Figure 3.8). D'autant plus que les calculs par MCNPX ne nécessitent pas de corriger l'effet de coïncidence des pics et d'auto absorption. Ces effets sont intrinsèquement pris en compte dans la simulation [8].

A partir de la courbe d'efficacité, on peut calculer les valeurs des concentrations en activité des radioéléments présents dans les trois échantillons, en utilisant la formule liant l'efficacité absolue à l'activité :

$$\varepsilon(E) = \frac{N_{net}}{A_c m I_\gamma t_{ac}} \quad (3.2)$$

N_{net} : Net area. (Cps) = $N_{Bruit} - N_{BF}$.

t_{ac} : temps d'acquisition (s).

m : la masse (kg).

A : activité Bq/Kg.

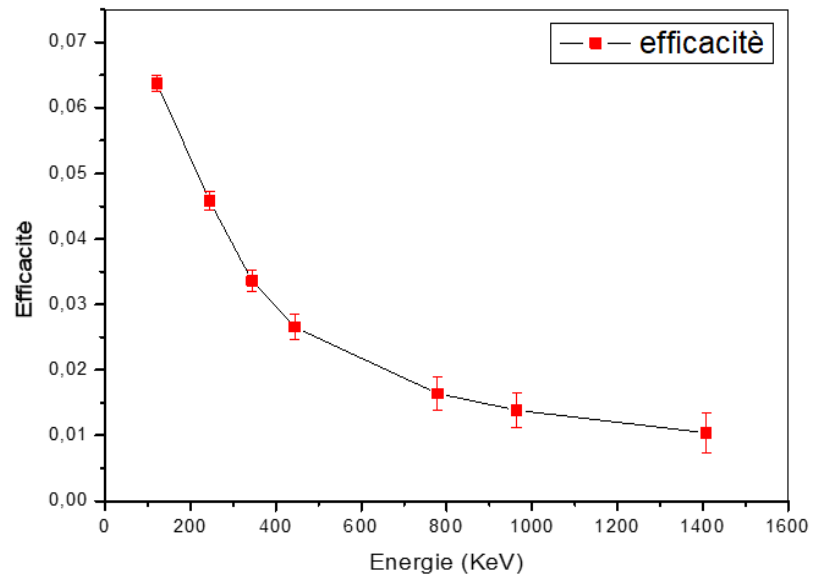


Figure 3.8 : Courbe d'efficacité en fonction de l'énergie.

Mesures & analyse des résultats

Introduction

Les mesures radiométriques ont été effectuées pour l'identification des radionucléides présents dans tous les échantillons et pour la détermination quantitative de leur activité respective. L'analyse de tous les échantillons pour déterminer l'activité du ^{226}Ra , ^{234}Th et ^{40}K a été réalisée par spectrométrie gamma moyennant un détecteur germanium hyper-pur (GeHP) de type N est décrit dans la section précédente (3.1). Dans la présente section, nous présentons la procédure adoptée pour la préparation des échantillons, les mesures du bruit de fond, les calculs d'activité du radium et radium équivalent ainsi que les indices de risque.

1. Prélèvement des échantillons

Les échantillons avec lesquelles nous avons travaillé provenaient des filtres à manches de la cimenterie de MAFTEH-Algérie. Il s'agit de trois types de matériau :

1. Poussière de la farine crue
2. Poussière de clinker
3. Poussière de ciment (produit marchand)

Chacun des échantillons prélevés est un mélange des matières premières (sable, argile, minerai de fer, calcaire, gypse) qui passe par plusieurs étapes de fabrication mentionnées au chapitre 1.

4.2. Préparation des échantillons

Les trois échantillons sont récupérés sous forme de poudre fine dont les grains sont inférieures à 200 μm . Le poids moyen de l'échantillon est de l'ordre de 500 g, Cependant le poids exact de chaque échantillon a été mesuré par une balance très sensible puis libellé sur leur conteneur.

Les conteneurs utilisés sont des cylindriques et creux en polyéthylène de type Marinelli. Leur forme, figure 4.1, permet d'assurer une géométrie proche de 4π et d'assurer une meilleure collecte d'activité dans le détecteur. Ces dernières sont nettoyées avec l'acide chlorhydrique et rincées plusieurs fois à l'eau bi-distillée. Ils sont ensuite scellés par un film plastique de paraffine pour éviter toute fuite du gaz Radon ^{222}Rn .

Ces échantillons fermés hermétiquement doivent être conservés pendant 24 jours pour atteindre l'équilibre séculaire du ^{226}Ra avec ces descendants à courte demi-vie et le ^{222}Rn avant d'être analysés.

par spectrométrie gamma. Cette étape est nécessaire pour s'assurer que le radon est confiné dans le volume et que les produits descendants resteront également dans l'échantillon.



Figure 4. 1 : Forme Marinelli des conteneurs des échantillons et le ruban de paraffine

2. Mesure du bruit de fond

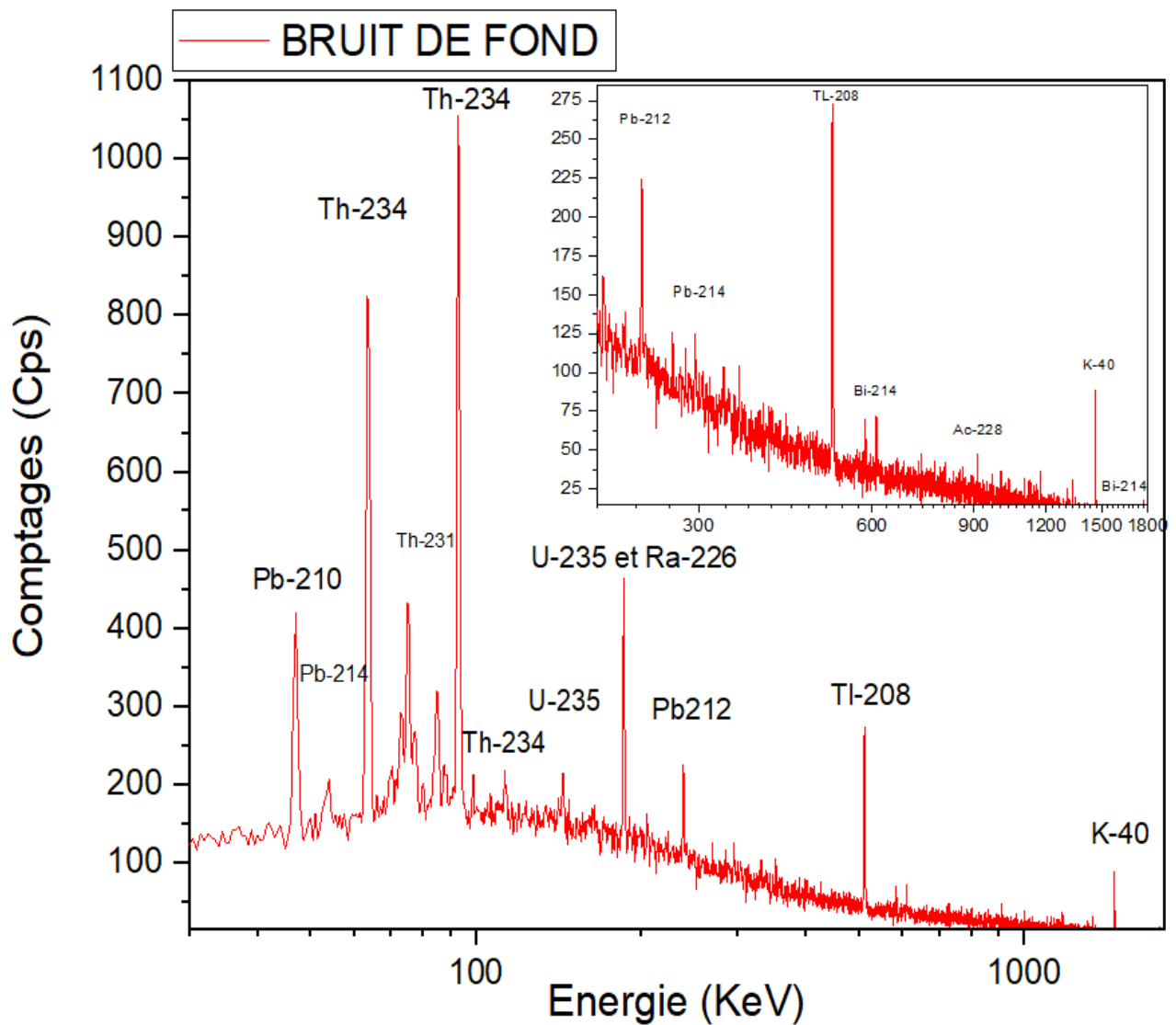


Figure 4.2 : Spectre de bruit de fond (Eau des-ionisés) obtenu pour un comptage de 24heures

Le bruit de fond a été déterminé en présence d'un échantillon d'eau bi-distillée et dé ionisée et conditionne dans un conteneur b cher Marinelli. Il est interpos  sur le d tecteur de la m me mani re que les  chantillons. La dur e de l'acquisition de spectre est de 24 heures.

Le spectre de bruit de fond de la Figure 4.2 r v le la pr sence des radionucl ides de la s rie de l'uranium et du thorium. Celle-ci doit  tre soustraite de l'activit  des  chantillons que nous allons analyser.

Tableau 4.1 : Le comptage des diff rents  chantillons et du bruit de fond pendant 24h

Radionucl�ide	E_γ (KeV)	Bruit de fond
^{234}Th	63,3	1388
^{214}Pb	241,98	52
	351,9	174
^{214}Bi	609,3	160
	1120,28	55
	1238,11	35
^{228}Ac	338,3	0
	911.6	125
	964.64	48
	968.97	14
^{208}Tl	583.2	124
	860,5	49
^{235}U	143,7	128
^{40}K	1460,8	544

3. Limite et seuil de d tection

Les limites de d tection servent comme moyen d'estimation du niveau de confiance des mesures effectu e. Le tableau ci-dessous montre des limite de d tection tr s petite devant toutes les activit s mesur s des  chantillons consid res. [21]

$$\text{LMD} = \frac{LD}{\varepsilon_\gamma \times m \times P_\gamma} \quad (4.1)$$

O  LD est la limite de d tection calcul e   partir de la formule de curie :

$$LD = 1.645 \times \frac{\sqrt{B}}{T} \quad (4.2)$$

Avec :

B est le bruit de fond sous pic d'int r t

T est le temps r el de comptage.

Tableau 4.2 : Limite détection (Bq/kg)

radionucléide	E(KeV)	B	LD	LMD (Bq/kg)
²³⁴ Th	63.3	1388	0.000709	1.17
²¹⁴ Pb	241.98	52	0.000137	0.10
	351.9	174	0.000251	0.05
²¹⁴ Bi	609.3	160	0.000240	0.06
	1120.28	55	0.000141	0.19
	1238.1	35	0.0001126	0.42
²²⁸ Ac	338.3	0	0	1
	911.6	125	0.0002128	0.12
	964.64	48	0.000131	0.43
	968.97	14	0.0000712	0.73
²⁰⁸ Tl	583.2	124	0.000212	0.30
	860.5	49	0.000133	0.18
²³⁵ U	143.7	128	0.000215	0.009
⁴⁰ K	1460.8	544	0.000444	0.96

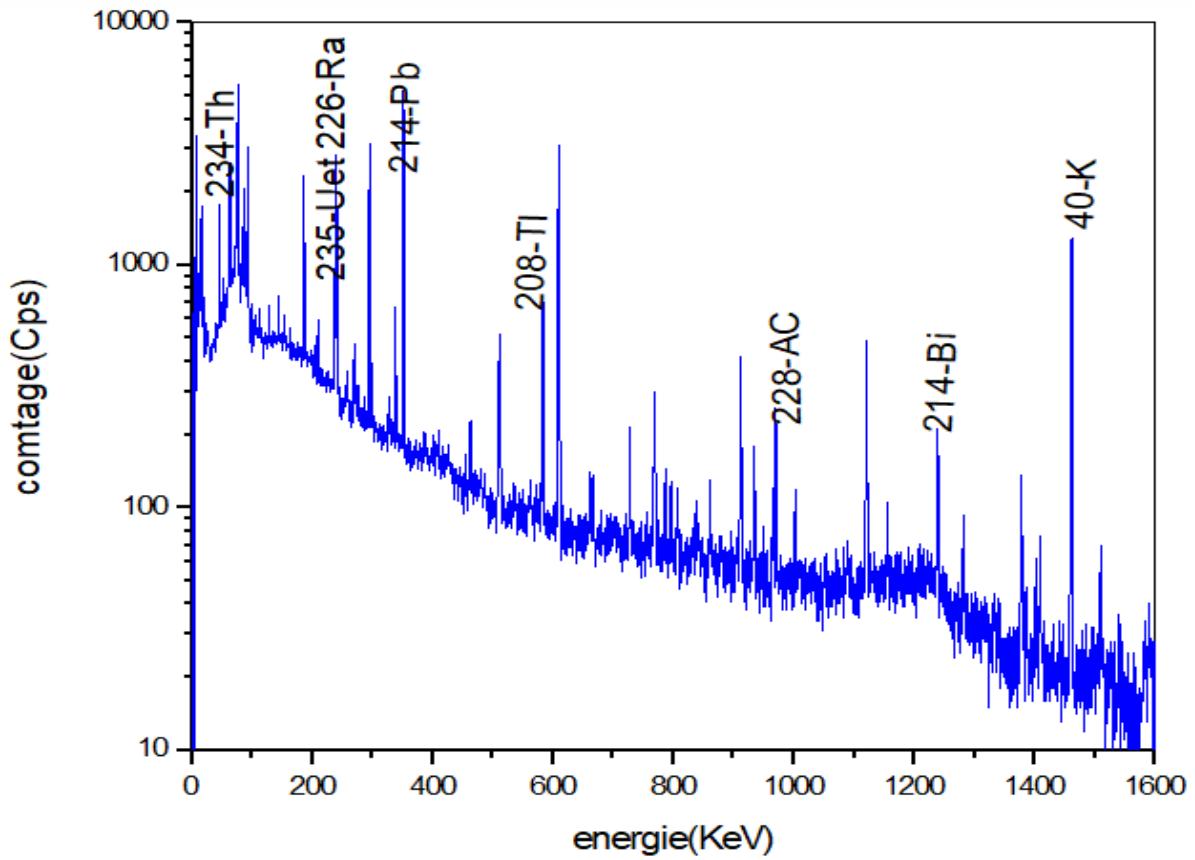
4. Analyse qualitative

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 atome radioactifs présents dans l'échantillon.

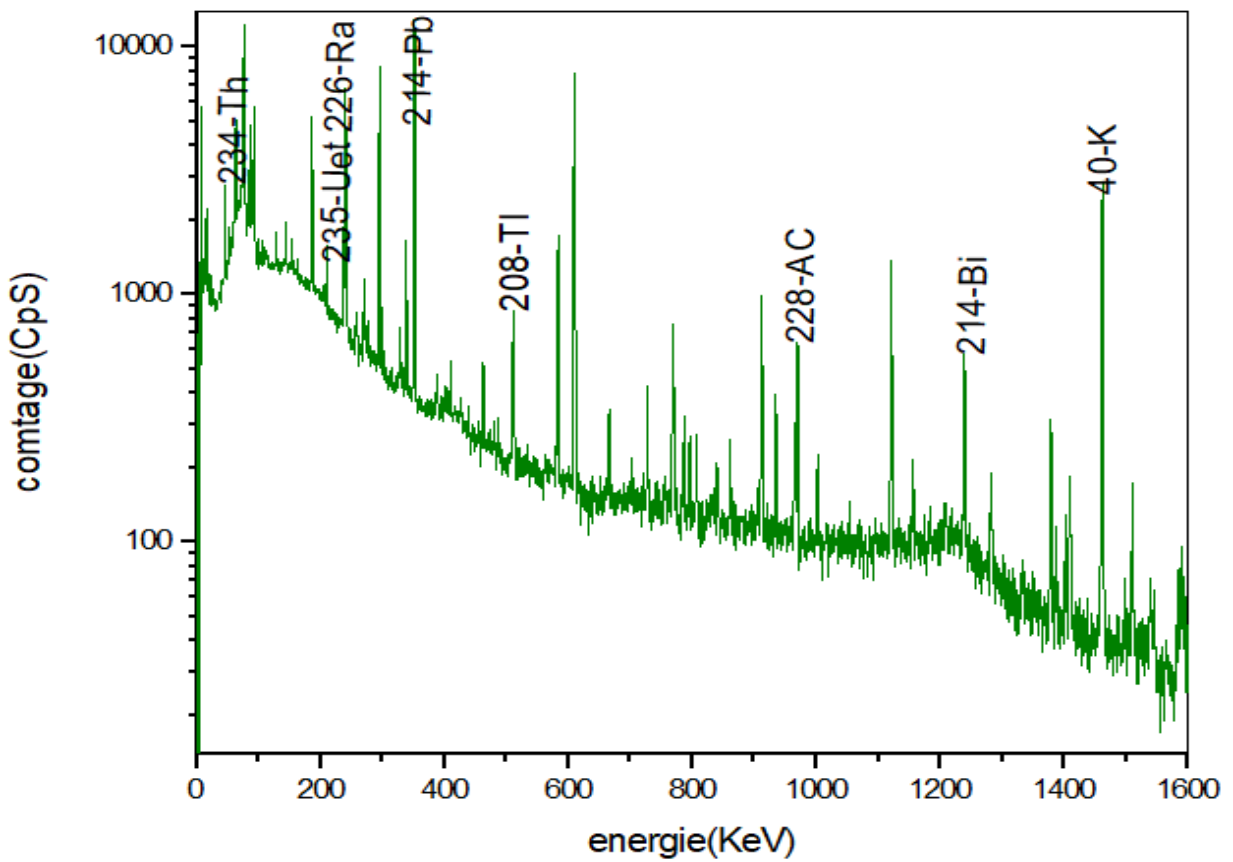
L'analyse des spectres se fait à partir des caractères suivants des pics :

- La position des pics(ou énergie des photons), on entreprend l'analyse qualitative du spectre : on détermine les radioéléments présents dans l'échantillon.
- Par la surface des pics (ou nombre d'impulsion), on entreprend l'analyse quantitative du spectre on détermine la concentration de chaque radioélément dans l'échantillon.

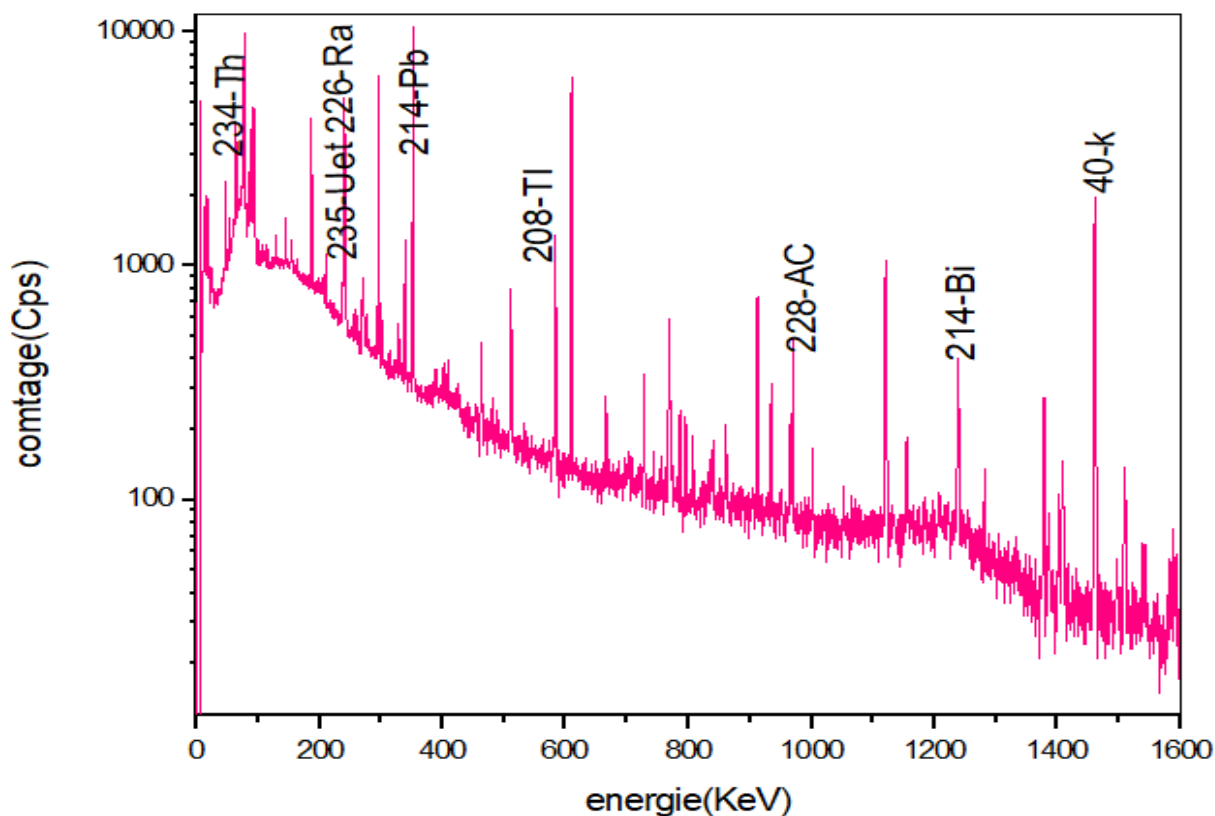
Les échantillons ont été analysés dans les mêmes conditions que celle de la mesure de bruit de fond. La durée de l'acquisition des spectres est de 24heures.Les spectres obtenus pour différents échantillons sont illustrée donnés dans la Figure 4.3.



a) Spectre de la Poussière de la farine crue



B) Spectre de la poussière du clinker



c) Spectre de lapoussière du ciment

Figure 4.3 : Spectre des échantillons analysé

5. Analyse quantitative

5.1. Mesure de l'activité des échantillons

Tableau 4.3 : Le comptage des trois échantillons pendant 24h

Radionucléide	E_{γ} (KeV)	N (Coups/s)		
		Farine crue	Clinker	Ciment
^{234}Th	63,3	3529	6537	5412
^{214}Pb	241,98	4168	11351	8676
	351,9	14842	39174	31147
^{214}Bi	609,3	10479	27476	21763
	1120,28	2018	5733	4614
	1238,11	768	2307	1705
^{228}Ac	338,3	1565	3735	2926
	911,6	1279	3535	2769
	964,64	280	866	541
	968,97	874	2287	1615
^{208}Tl	583,2	2097	5138	4263
	860,5	229	609	499
^{235}U	143,7	617	1223	1283
^{40}K	1460,8	6160	14026	9333

Le tableau 4.3 montre l'activité brute (activité nette + bruit de fond) enregistrée pour les deux échantillons pendant 24h en fonction de l'énergie correspondant à chaque pic.

En utilisant les données du tableau ci-dessus, on peut calculer l'activité spécifique des différents échantillons à partir de la formule (4.3), le tableau 4.4 montre les activités calculées sur la base de cette formule :

$$A_s = \frac{N_{d\grave{e}tc} - N_{BF}}{\varepsilon_\gamma P_\gamma t_c m} \quad (4.3)$$

Où :

A_s : Activité spécifique de radioélément

$N_{d\grave{e}tc}$: Le nombre de coups enregistrés sur le pic

N_{BF} : Comptage de bruit de fond

ε_γ : Efficacité pour chaque raie gamma

P_γ : La probabilité d'émission

t_c : Temps de comptage exprimé en second

m : masse de l'échantillon en kg

Tableau 4.4 : Activité des radionucléides pour les trois échantillons

Radionucléide	E (KeV)	P_γ %	Activités (Bq/kg)		
			Poussière de Farine crue	Poussière de Clinker	Poussière de Ciment
^{234}Th	63,3	3.9	67.74	72.18	51.40
^{214}Pb	241,98	7.47	38.52	55.32	46.62
	351,9	37.1	37.66	52.85	47.17
^{214}Bi	609.3	46.09	32.11	45.47	41.80
	1120,28	15.04	32.06	46.97	44.91
	1238,11	5.9	33.70	52.19	44.04
^{228}Ac	338,3	12.01	12.65	15.56	35.52
	911.6	29	8.95	12.76	12.50
	964.64	5.45	10.64	17.67	13.27
	968.97	17.46	10.36	14.57	12.64
^{208}Tl	583.2	86	3.44	4.35	5.27
	860,5	12	3.70	5.27	5.05
^{235}U	143,7	10.5	0.30	3.27	3.74
^{40}K	1460,8	10.70	154.20	181.02	32.31

5.2. Calcul de l'activité équivalente de ^{226}Ra

Le ^{226}Ra appartient à la série ^{238}U , son activité est déterminée après l'obtention de l'équilibre séculaire entre ses descendants à savoir ^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi .

Le tableau 4.4 montre les différents spectres des échantillons mesurés. Seuls ^{214}Pb et ^{214}Bi affichent des pics photoélectriques assez importants, donc plus précis. Par conséquent l'activité du radium est déduite de ses deux descendants par la formule suivante :

$$A(^{226}\text{Ra}) = \frac{A(^{214}\text{Pb}) + A(^{214}\text{Bi})}{2} \quad (4.4)$$

- L'activité du ^{40}K est mesurée indirectement à partir de la raie de 1460 KeV.
- L'activité du ^{232}Th est mesurée indirectement à partir de la raie de (911,6KeV) de ^{228}Ac

Tableau 4.5 : l'activité mesurée des radionucléides ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K par échantillon

Echantillons	Activité (Bq /kg)		
	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
Poussière de farine crue	34,88±0,38	8,95±0,49	154,20± 2,11
Poussière de clinker	44,48± 0,32	12,76±0,27	181,02± 1,54
Poussière de ciment	49,16± 0,33	12,50±0,36	32,31± 0,36

5.3. Mesure de l'activité équivalente du radium

Pour représenter les niveaux d'activité du ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K par une seule quantité qui prend en compte les risques liés aux rayonnements qui leur sont associés, un indice radiologique commun a été utilisé. Cet indice est appelé Radium Equivalent Activité (Ra_{eq}). Il est défini mathématiquement par (UNSCEAR, 2000). [22]

$$Ra_{eq}(\text{Bq/kg}) = A_{C_{226\text{Ra}}} + 1.43 A_{C_{232\text{Th}}} + 0.077 A_{C_{40\text{K}}} \quad (4.5)$$

Avec : $A_{C_{226\text{Ra}}}$, $A_{C_{232\text{Th}}}$ et $A_{C_{40\text{K}}}$ sont respectivement les concentrations du ^{226}Ra , ^{232}Th , et ^{40}K en Bq/s.

Le tableau

5.4. Indices de risque externe

Les indices de risques sont définis par un modèle, en tenant compte de l'activité maximale du Ra_{eq} (370Bq/kg). [23] L'indice de risque externe (H_{ex}) est défini par l'équation suivante :

$$H_{ex} = \frac{A_{226\text{Ra}}}{370} + \frac{A_{232\text{Th}}}{259} + \frac{A_{40\text{K}}}{4818} \quad (4.6)$$

5.5. Indice de risque interne

En plus de l'indice de risque externe, le radon et sa progéniture de demi-vie courte sont également dangereux pour les organes respiratoires, en raison de la consommation d'eau, Il est quantifié par l'indice de danger interne H_{in} , qui est donnée par l'équation

$$H_{in} = \frac{A_{226Ra}}{185} + \frac{A_{232Th}}{259} + \frac{A_{40K}}{4818} \quad (4.7)$$

Les valeurs des indices (H_{ex} , H_{in}) doivent être inférieure à l'unité pour que le risque d'irradiation soit pour négligeable

4.5.5. Débit de dose absorbée

UNSCEAR [22] adonné les facteurs de conversion de doses suivantes 0,462 .0, 621. 0, 0417 pour convertir respectivement les concentrations d'activité de ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K en doses (nGy/h par Bq/l). Ainsi les doses de rayonnement gamma reçus par la population qui vivent dans la région sont données par :

$$D \text{ (nGy/h)} = 4.462 A_{C_{226Ra}} + 0.621 A_{C_{232Th}} + 0.0417 A_{C_{40K}} \quad (4.8)$$

4.5.6. Equivalent de dose effective annuelle(EDEA)

Les calculs de l'équivalent de dose effective dépendent de la valeur de débit dose absorbée dans l'air. Pour réaliser ces calculs, il convient de tenir compte du coefficient de conversion du débit de dose absorbée dans l'air en équivalent de dose efficace reçue par adulte et par fraction d'occupation.

Il s'agit dans ce cas d'estimer l'EDEA au quelle est soumis les travailleurs de l'usine. Nous avons estimé le facteur d'occupation des lieux de travail en considérant un travailleur exerçant 48 semaines de travail par année, 5 jours par semaine et 8 heures par jour, soit 1920 heures par année, équation (4.9).

$$D_{\text{eff}}(\text{mSv/an}) = D \text{ (nGy/h)} \times 1920 \text{ (heures/an)} \times 0.7 \times (10^3 \text{ mSv} / 10^9) \quad (4.9)$$

$$D_{\text{eff}}(\text{mSv/an}) = D \text{ (nGy/h)} \times 1.344 \times 10^{-3} \quad (4.9)$$

Tableau 4.6 : Les activités équivalentes de Radium et les indices de risque radiologique des échantillons

Échantillon	Raeq (Bq/kg)	H_{ex}	H_{in}	D (nGy/h)	D_{eff} (mSv/an)
Poussière de farine crue	59,55	0,16	0,25	28,10	0.03
Poussière de clinker	76,66	0,20	0,32	36,02	0.04
Poussière de ciment	69,52	0,18	0,32	31,82	0.04

Ces résultats représentent les activités des différents radionucléides mesurées dans les échantillons de poussière de la cimenterie étudiés.

Les trois échantillons de poussière montrent des activités équivalentes de radium les plus élevées, cette activité sont acceptable à la limite recommandée par l'Organisation de Coopération et de Développement Economique **OECD** (370 Bq/kg). Nous avons évaluée les indices de risque radiologique associés qui sont également largement inférieure à la dose maximale admissible fixée pour le public et les travailleur pendant une année. L'indice maximale mesure est celui de poussière de clinker qui est de l'ordre 0.32 mSv/an, qui ne pas dépasser la limite international pour le public (1 mSv/an) et pour les travailleurs professionnelle elle est de l'ordre 20mSv/an.

Les risques externe et interne ne pas dépassé 1, donc ne pas représentent un risque radiologique pour les ouvriers et pour les habitants.

Conclusion générale

Le travail proposé dans ce mémoire porte sur la mesure de la radioactivité naturelle dans la poussière de la cimenterie de Mafteh sise à la wilaya de Blida. Une étude radiologique a été ensuite réalisée pour ces poussières afin d'évaluer les risques provoquées, en estimant ainsi les doses reçues par le public et les travailleurs durant une année.

La méthode d'analyse utilisée est basée sur la technique de spectrométrie gamma fine moyennant le détecteur Ge Hp du Laboratoire d'Analyse par Activation Neutronique du CRND. Cette technique nous a permis l'identification et la quantification des radioéléments existants dans nos échantillons.

Les activités des deux radioéléments ^{214}Pb et ^{214}Bi ont été exploitées pour déterminer l'activité spécifique du ^{226}Ra . Les résultats d'analyse ont révélé une teneur acceptable en $^{226}\text{Ra}_{\text{eq}}$ égale à 76.66 Bq/kg, pour l'échantillon poussière de clinker (activité maximale par rapport aux autres échantillons), cette activité est acceptable en comparaison avec la limite recommandée par l'Organisation de Coopération et de Développement Economique, **OECD** (370 Bq/kg).

Nous avons évalué les indices de risque radiologique pour les travailleurs exerçant dans l'usine. Ces indices sont également largement inférieurs à la dose maximale admissible fixée pour le public et les travailleurs pendant une année. L'indice maximale mesuré est celui de poussière de clinker qui est de l'ordre 0.32 mSv/an. Cette valeur est également plus petite que la limite internationale pour le public (1 mSv/an).

Cette étude a montré que tous les produits analysés peuvent être classés, selon la recommandation de la Commission Européenne, dans la catégorie des produits exemptés de toute restriction d'utilisation. C'est-à-dire qu'ils ne représentent aucun risque radiologique, toutefois l'inhalation d'une telle activité est tout de même encore indésirable sur le plan hygiène et sécurité.

Les résultats obtenus doivent être confirmés par d'autres expériences faisant intervenir plusieurs travaux similaires. Pour cela, nous faisons des comparaisons des mesures de l'activité du produit fini, poussière de cimenterie de Meftah, avec les résultats des travaux similaires des différents pays. La comparaison montre que nos résultats sont raisonnables dans leurs ordre de grandeurs qui se résument à 41 Bq/kg pour ^{226}Ra , 27 Bq/kg pour ^{232}Th et 422 Bq/kg pour ^{40}K . Ces derniers sont très proches des valeurs du standard internationale publié par la Commission Européenne soit 40 Bq/kg pour ^{226}Ra , 30 Bq/kg pour ^{232}Th et 400 Bq/kg pour ^{40}K .

Mis à part l'évaluation de l'activité des MRNs dans les constructions Algériennes, il existe d'autres secteurs industriels et milieux environnementaux ayant une importante activité en MRNs qui constituent une source de pollution inquiétante qu'il serait important de l'examiner. Nous pourrions citer les eaux thermales, l'usine de Phosphate, les usines de récupération de la ferraille et l'industrie de pétrole de gaz et leurs raffineries.

Référence

- [1] https://fr.wikipedia.org/wiki/Groupe_industriel_des_ciments_d%27Alg%C3%A9rie
- [2] <https://www.toutsurlebeton.fr/le-ba-ba-du-beton/le-ciment-composition-et-fabrication/ciment>.
- [3] **Van De Vorst A.**, introduction à la physique, De Boeck-Wesmael, Bruxelles, 1992, pp.156-172.
- [4] Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire, IRSN 2015 exposition de la population française aux rayonnements ionisants, p8
- [5] **Foos J.**, Manuel de radioactivité, Herman, paris, 2009, pp.206-209.
- [6] **Selaimia Ferdjani.**, La radioactivité. Cours
<https://cours-st.webs.com/chapitre%20II%20LA%20RADIOACTIVIT>.
- [7] <https://physique.coursgratuits.net>
- [8] **Merabet Bouthaina.**, Mesure de l'activité des matières radioactives naturelles (mrns) dans le sol de la cimenterie de Meftah-Algérie, mémoire Master, Université des sciences et de la technologie houari Boumediene_ 2019.
- [9] **Ligou J.**, introduction au génie nucléaire, presse polytechnique et universitaires romandes, suisse_ 1982.
- [10] **Guembou Sébastien.**, Etude des échantillons environnementaux par spectrométrie gamma cas des sols des campus i et ii de l'Université de Douala, mémoire de Master, Université Douala_2013
- [11] <https://www.iaea.org/fr/themes/lanalyse-par-activation-neutronique>
- [12] **Mejri Mouna.**, Analyse par Spectrométrie Alpha des radio-isotopes du Thorium et d'Uranium dans le sol (Sol de référence IAEA-375 et Sol naturel de la région d'Utique (Bizerte)), diplôme national d'ingénieur, Université de Tunis El Manar., Référence de l'analyse par spectrométrie alpha_2008
- [13] **Izerkouken Mahmoud.**, effets d'irradiations neutronique et ions lourds rapide sur les propriétés optiques et dimensionnelles du $Y_3Al_5O_{12}$ et de la zircone stabilisée à l'yttrium, Thèse de doctorat d'Université Ferhat Abbas-Sétif_2007.
- [14] **M. Hugues Paradis.**, Développement de la mesure par spectrométrie γ en coïncidence de L'Université paris-Saclay préparée à l'université paris sud xi_ 2016
- [15] **Pirard B.**, Etude et validation d'un spectromètre gamma pour la mesure de la composition chimique des surfaces planétaires- Application à une mission vers Mercure, thèse de Doctorat de l'Université Toulouse III, Spécialité : Instrumentation Spatiale_ décembre 2006.

- [16] **C. Ngo and H. Ngo.**, Physique statistique – 3^{ème} Edition. Physique. Dunod_ 2008.
- [17] **Azli Tarek.**, Simulation de la détection des rayonnements gamma par un détecteur en Germanium, thèse de doctorat, Université de Sétif_ 2015
- [18] <http://physique.unice.fr/sem6/2013-2014/PagesWeb/PT/Spectrometrie/Chaine.html>
- [19] <http://physique.unice.fr/sem6/2013-2014/PagesWeb/PT/Spectrometrie/rapport.pdf>
- [20] **Azbouche Ahmed.**, Développement d'une méthodologie d'analyse par spectrométrie gamma et par activation neutronique pour l'étude de la distribution des radio-traceurs et des Terres rares dans le sol, thèse de doctorat Université des sciences et de la Technologie Houari Boumediene_2015
- [21] ORTEC Gamma vision software User manual version 8.1 Printed. Technical report in U.S.A, 2017
- [22] UNSCEAR (2000), United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (2000) Sources and effects of ionizing radiation. 2000 reports. United Nations, New York
- [23] **Krisiuk, E. Tarasov, S., Shamov, V., Shalk, N., Lisachenkov, E., Gomelesky, L.G.**, A study of Radioactivity in building materials. Research institute for radiation hygiene_1971.