

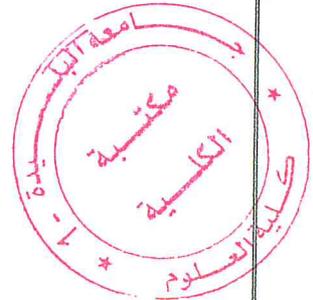
République algérienne démocratique et populaire  
 Ministère de l'enseignement supérieur et de la recherche scientifique  
 Université Saad Dahleb Blida 1



Faculté des Sciences  
 Département de physique

Mémoire de fin d'étude  
 Pour l'obtention du diplôme de Master en Physique

Option : physique appliqué



Thème :

**Estimation de la dose pour les travailleurs des mines de phosphates**

Présenté par :

Keltoum AZZOUG

Soutenu le 02 / 07 / 2018 devant le jury composé de :

Mohamed Amine	BENAMAR	Professeur (USDB)	Président
Ahmed	AZBOUCHE	Chercheur Principal (CRNA)	Examineur
Med	MEBARKA	Chercheur Assistant (CRND)	Examineur
Abd	BADREDDINE	Chercheur Confirmé (CRNA)	Encadreur

MA-530-126-1

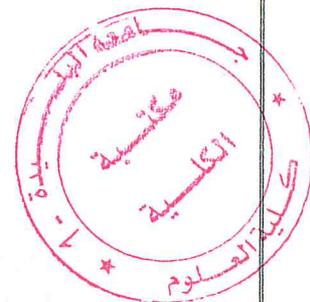
République algérienne démocratique et populaire  
Ministère de l'enseignement supérieur et de la recherche scientifique  
Université Saad Dahleb Blida 1



Faculté des Sciences  
Département de physique

Mémoire de fin d'étude  
Pour l'obtention du diplôme de Master en Physique

Option : physique appliqué



Thème :

**Estimation de la dose pour les travailleurs des mines de  
phosphates**

Présenté par :

Keltoum AZZOUG

Soutenu le 02 / 07 / 2018 devant le jury composé de :

Mohamed Amine	BENAMAR	Professeur (USDB)	Président
Ahmed	AZBOUCHE	Chercheur Principal (CRNA)	Examineur
Mohamed	MEBARKA	Chercheur Assistant (CRND)	Examineur
Abdelwahab	BADREDDINE	Chercheur Confirmé (CRNA)	Encadreur

Blida 1 - 2017/2018-

# Dédicace

Je dédie ce travail en première lieu à la lumière de mes jours et les étoiles de mes nuits : **mes parents** qui ont sacrifiés toute leur vie pour faire de moi ce que je suis dans ce moment. Que dieu a garde

À ma cher charmante sœur **Imane** et leur marie **Mohamed** et leurs chers enfants **Aya, Moussa et Rahma**

À mes chers frères **Abderrahmane** et **Tarek** et leurs femmes **Samihha** et **Chaïma** et leurs chères enfants **Syrine, Mohamed** et **Khadidja**

Et spécialement à mon cher mari **Aboubakr**. Aucun mot ne saurait t'exprimer mon profond attachement et ma reconnaissance pour l'amour, la tendresse et la gentillesse dont tu m'as toujours entouré. Et aussi à **baba Redouane** et **mama Amina** et **Kheira**.

À toute ma famille.

À mes amies chaque une avec son nom : **Romaissa, Djazia, Hadjer, Nesrine, Zineb** et **Meryoumat**.

## Résumé

Les industries extractives contribuent au renforcement de la radioactivité naturelle par le fait que la plupart des éléments à extraire s'accompagnent des radionucléides naturels. L'extraction du phosphate, activité répandue en Algérie, est l'une des activités industrielles qui perturbent la radioactivité naturelle pour la rendre nocive. Ce phénomène appelé **NORM** (Naturally Occuring Radioactive Material) ou alors radioactivité naturelle renforcée est présent dans toutes les mines dont celles du phosphate.

Suite aux modifications humaines, à travers les processus industriels, la concentration en radionucléides naturels peut atteindre des proportions considérables et devenir ainsi une source d'expositions, interne et externe, pour les travailleurs des mines.

Dans notre travail, on a utilisé la spectrométrie gamma qui est la technique de mesure de la radioactivité la plus employée, dans le but d'estimer l'importance de ce phénomène des **NORM**. Cette technique nous a permis de déterminer la radioactivité présente dans des échantillons provenant de mines algériennes de phosphates.

Pour compléter l'étude, nous avons estimé les doses pouvant être reçues par les travailleurs de ces mines dans un but de radioprotection, c'est-à-dire les protéger éventuellement contre les effets néfastes des rayonnements ionisants issus des **NORM**.

## Abstract

Extractive industries contribute to the enhancement of natural radioactivity by the fact that most of the elements to be extracted are accompanied by natural radionuclides. Phosphate extraction, a widespread activity in Algeria, is one of the industrial activities that disrupt natural radioactivity to make it harmful. This phenomenon called Naturally Occuring Radioactive Material (NORM), is present in all mines including phosphate.

As a result of human modifications, through industrial processes, the concentration of natural radionuclides can reach considerable proportions and thus become a source of internal and external exposure for mine workers.

In our work, gamma spectrometry, the most widely used radioactivity measurement technique, was used to estimate the importance of this NORM phenomenon. This technique allowed us to determine the radioactivity present in samples from Algerian phosphate mines.

To complete the study, we estimated the doses that can be received by the workers of these mines for the purpose of radiation protection, that is to say to protect them against the harmful effects of ionizing radiation from NORM.

## Les mots clés

Radioprotection, rayonnements ionisants, NORM (Naturally Occuring Radioactive Material) la spectrométrie gamma, les mines de phosphates, la dose.

## Table de matières

Liste des tableau	2
Liste des figures	3
Introduction générale	4
<b>Chapitre I : La radioactivité Naturelle</b>	5
I.1.historique	5
I.2.Origines de la radioactivité naturelle	6
I.3. Qu'est-ce la radioactivité naturelle ?	7
I.3.1 Le rayonnement alpha	7
I.3.2 Le rayonnement bêta	8
I.3.3 Les rayonnements photon $\gamma$	8
I.4 Les rayonnements ionisants et non ionisants	8
I.4.1 Les rayonnements ionisants	8
I.4.2 Les rayonnements non ionisants	9
I.5 Radioprotection	10
I.5.1 Définition de la radioprotection	10
I.5.2 L'objectif de la radioprotection	10
I.5.3 Grandeurs dosimétriques	10
<b>Chapitre II : La réglementation en matière de radioprotection</b>	12
II.1 Cadre réglementaire	12
II.1.1La réglementation nationale	12
II.1.2 L'accident de Sétif	12
II.2 La réglementation internationale	13
II.2.1. Évolution des recommandations de la CIPR	13
II.2.2 Objectifs des Recommandations	14
II.2.3 De la publication 26 (1977) à la publication 60 (1990)	14
II.2.4 De la publication 60 (1990) à la publication 103 (2007)	16
II.3. Conclusion	17
<b>Chapitre III : Le phénomène NORM</b>	18
III.1. La radioactivité naturelle renforcée NORM	18
III.1.1 Les industries où l'on trouve les NORM	18
III.2. Exposition aux rayonnements ionisants	19
III.2.1 Irradiation externe	19
III.2.2 Irradiation par voie interne ou (contamination interne)	19

III.3. Les effets des Rayonnements Ionisants	20
III.3.1 Les effets déterministes	20
III.3.2. Les effets stochastiques	22
III.4. NORM dans l'industrie de phosphate	22
III.5. Généralité sur la réglementation des NORM	23
III.6. NORM dans les minerais de phosphate	24
III.7 NORM dans la production d'acide phosphorique	27
III.7.1 Le phosphogypse	28
III.8 L'industrie de phosphate dans l'Algérie	28
III.8.1 Introduction	28
III.8.2 Le phosphate	29
III.8.3 Aperçu sur la production du phosphate Algérien	30
III.8.4 Situation géographique de Djebel Onk	30
III.8.5 Les différents gisements de phosphate de Djebel-Onk	30
III.8.6 Les caractéristiques minéralogique et chimique du minerai de Djebel Onk	31
III.9 Les types de mines	31
III.9.1 Mine à ciel ouvert	32
III.9.2 Mine souterraine	33
III.9.3 Aperçu sur la société des phosphates et la production annuelle	34
III.9.4 Les domaines d'application des minerais de phosphate	34
<b>Chapitre IV : La Spectrométrie Gamma</b>	35
Introduction	35
IV.1 Analyse nucléaire	35
IV.1.1 Scintillation liquide	35
IV.1.2 Alpha-Bêta total	35
IV.1.3 Spectrométrie alpha	35
IV.1.4 Spectrométrie gamma	36
IV.1.4.1 Principe de la spectrométrie gamma	36
IV.1.4.1.a Effet photoélectrique	37
IV.1.4.2 Atténuation des photons dans la matière	38
IV.1.4.3 La chaîne de spectrométrie gamma	39
IV.2 Préparation des échantillons	40
IV.2.1 Équilibre séculaire	42
IV.2.2 La préparation de l'acide phosphorique et le phosphogypse	43
IV.2.2.1 Synthèse de l'acide phosphorique	43

IV.3 Système de mesure	46
IV.3.1 Étalonnage de la chaîne	47
IV.3.1.1 Étalonnage en énergie	47
IV.3.1.2 Étalonnage en efficacité	48
IV.3.2 Bruit de fond	50
IV.3.3 Activité Minimale Détectable (AMD)	51
IV.3.4 Analyse des échantillons	52
IV.3.4.1 Calcul de l'activité	53
IV.3.4.2 Calcul des concentrations des radionucléides par spectrométrie gamma	54
IV.3.4.3 Calcul des activités du <sup>226</sup> Ra et de l' <sup>235</sup> U	54
IV.3.5 Interprétation des résultats	62
IV.4 Conclusion	64
<b><i>Chapitre V : Estimation des doses reçues par les travailleurs</i></b>	65
Introduction	65
V.1 Présentation de DOSIMEX	65
V.1.1 Principes de fonctionnement du code DOSIMEX-GX	65
V.1.2 Utilisation DOSIMEX-GX	65
V.1.2.1 Choix de base de données radionucléides	65
V.1.2.2 Calcul du débit de dose gamma	66
V.1.3 DOSIMEX-I 2	68
V.2 Scénarios d'expositions	70
V.2.1 Secteur des mines	70
V.2.1.1 Exposition externe	71
V.2.1.2 Exposition interne	73
V.2.2 Phosphogypse	74
V.3 Conclusion	76
Conclusion générale	77

## Liste des figures

<b>Figure I.1</b> : La découverte de la radioactivité naturelle	4
<b>Figure I.2</b> : Les trois séries radioactives	6
<b>Figure I.3</b> : Le rayonnement alpha	6
<b>Figure I.4</b> : L'émission $\beta^-$	7
<b>Figure I.5</b> : L'émission $\beta^+$	7
<b>Figure I.6</b> : Pouvoir de pénétration de différents types de rayonnement ionisant	8
<b>Figure I.7</b> : Les rayonnements non ionisants	8
<b>Figure III.1</b> :Les voies de contamination	18
<b>Figure III.2</b> : Les effets déterministes et les effets stochastiques	21
<b>Figure III.3</b> : Le minerai et la roche de phosphate	24
<b>Figure III.4</b> : Phosphogypse	27
<b>Figure. III.5</b> : Carte de géographie des sites des mines de phosphates en algérie	28
<b>Figure III.6</b> : Carte géographique de djebel onk	29
<b>Figure III.7</b> : Mine à ciel ouvert	31
<b>Figure III.8</b> : Mine souterraine	32
<b>Figure III-9</b> : Mine de djebel onk	32
<b>Figure IV.1</b> : Principales interactions des photons gamma avec la matière.	35
<b>Figure IV.2</b> : Spectre en énergie d'électrons suite à des diffusions compton	37
<b>Figure IV.3</b> : Prédominance de l'interaction photon-matière	38
<b>Figure IV.4</b> : Chaîne de spectrométrie gamma	38
<b>Figure IV.5</b> : Les échantillons à préparer	40
<b>Figure IV.6</b> : Conditionnement des échantillons	40
<b>Figure IV.7</b> : L'équilibre séculaire dans le cas de la chaîne de filiation du $^{232}\text{Th}$	41
<b>Figure IV.8</b> : Produits utilisés	42
<b>Figure IV.9</b> : Tamisage et pesage	43
<b>Figure IV.10</b> : Protocole de synthèse	43
<b>Figure IV.11</b> : L'acide phosphorique et le phosphogypse	44
<b>Figure IV.12</b> : Les couches de phosphogypse	44
<b>Figure IV.13</b> : Séchage de phosphogypse dans une étuve	45
<b>Figure IV.14</b> : Courbe de séchage de phosphogypse	45
<b>Figure IV.17</b> : Courbe d'étalonnage en énergie a été fait manuellement	47
<b>Figure IV.16</b> : Courbe d'étalonnage fournie par le logiciel	47
<b>Figure IV.18</b> : Courbe d'efficacité du standard de sol	48
<b>Figure IV.19</b> : Courbe d'efficacité du standard liquide	49
<b>Figure IV.20</b> : Spectre du bruit de fond	50
<b>Figure IV.21</b> : Spectre d'un échantillon de minerai	51
<b>Figure IV.22</b> : Spectre de l'acide phosphorique	51
<b>Figure IV.23</b> : Spectre d'un échantillon de phosphogypse	52
<b>Figure IV.24</b> : L'activité totale en fonction des échantillons	58
<b>Figure IV.25</b> : L'activité totale de l'acide et les résidus	60
<b>Figure IV.26</b> : Comparaison spectrale	61
<b>Figure V.1</b> : Fenêtre de dialogue pour le choix de la base de données	65
<b>Figure V.2</b> : Fenêtre de dialogue pour le choix de la géométrie de la source	65
<b>Figure V.3</b> : Fenêtre de dialogue pour le choix du terme source	66
<b>Figure V.4</b> : Fenêtre de dialogue pour l'ajout d'un nouveau radionucléide	66
<b>Figure V.5</b> : Fenêtre de dialogue pour le choix du type de calcul	67
<b>Figure V.6</b> : Fenêtre de dialogue pour indiquer les caractéristiques du local	68
<b>Figure V.7</b> : Fenêtre de dialogue pour saisir les informations sur les radionucléides	68
<b>Figure V.8</b> : Fenêtre de dialogue pour le calcul des doses intégrées	69
<b>Figure V.9</b> : Fenêtre de dialogue représentant le cas d'une immersion	70
<b>Figure V.10</b> : Fenêtre de dialogue représentant le cas d'explosion avec une source parallélépipédique simulant le minerai	71
<b>Figure V.11</b> : Fenêtre de dialogue qui représente le cas d'explosion interne	73

# Introduction générale

La radioactivité est un phénomène physique au cours duquel un noyau atomique instable se transforme spontanément en dégageant de l'énergie sous forme de rayonnements ionisants, pour atteindre un état plus stable.

Les concentrations de cette radioactivité dans la nature sont faibles, elles ne présentent donc aucun danger pour l'homme. Cependant, l'intervention humaine à travers plusieurs activités industrielles telles que l'extraction minière, la production et le traitement de certains produits finis et semi-finis peuvent induire des perturbations en concentrant et accumulant cette radioactivité. Il résulte alors que cette radioactivité naturelle qui était inoffensive à l'origine deviendra source d'exposition potentielle pour l'homme et l'environnement. Il s'agit alors des NORM qui est l'acronyme de Naturally Occuring Radioactive Materials, ou bien la radioactivité naturelle renforcée. Il devient alors nécessaire de protéger les travailleurs qui sont en contact permanent avec ces NORM.

L'objectif de notre travail est d'étudier le phénomène des NORM dans l'industrie du phosphate en faisant appel à la technique la plus utilisée en mesure nucléaire qui est la spectrométrie gamma.

Ce mémoire est divisé en deux parties : théorique et pratique. La partie théorique est basée sur la recherche bibliographique ou l'on présente les notions sur la radioactivité et sur la radioprotection (chapitre I), ensuite le cadre réglementaire en matière de radioprotection national et international est traité (chapitre II), et on entame, dans le chapitre III, le phénomène des NORM en développant ce phénomène pour le cas de l'industrie du phosphate. La partie expérimentale constituée par les chapitres IV et V, peut être subdivisé en deux parties représentées par chacun des deux chapitres. Ainsi le chapitre IV concerne la mise en œuvre de la technique de spectrométrie gamma en décrivant le matériel utilisé, les méthodes suivies, les valeurs de mesure obtenues, et les interprétations qui en découlent. Tandis que le chapitre V complète notre étude en estimant, à travers des calculs dosimétriques faisant appel à un code de calcul, les doses reçues par les travailleurs de l'industrie du phosphate. Évidemment, l'étude s'achève par une conclusion générale.

# Chapitre I : La radioactivité Naturelle

## I.1.historique

La radioactivité n'a pas été inventée par l'homme, c'est un phénomène naturel qui a été découvert à la fin du XIX<sup>ème</sup> siècle. Ce n'est qu'à partir de 1896, grâce à la découverte d'Henri Becquerel, que la radioactivité est devenue un sujet d'étude majeur.

Comme d'autres à son époque, le physicien allemand Wilhem Conrad Röntgen étudie les rayons cathodiques grâce au tube inventé par William Crookes vers 1875. En novembre 1895, lors d'une expérience, il découvre par hasard la présence de rayons inconnus, invisibles et distincts des rayons cathodiques. Il les appelle rayons X (inconnus), présentés à l'Académie des sciences de Paris, cette découverte attire l'attention d'Henri Becquerel physicien français et spécialiste des phénomènes de phosphorescence.

Il se demande alors si toutes les substances phosphorescentes émettent des rayons X et tente de le vérifier au cours d'une expérience réalisée en 1896, qui le conduira à découvrir la radioactivité naturelle.

Qu'a donc fait Becquerel ? Il a suivi une démarche scientifique.

D'abord, il a observé un phénomène et défini un problème, ensuite il a émis des hypothèses, il les a testées jusqu'à résoudre son problème, et a communiqué ses résultats à l'Académie des sciences.

Moins spectaculaire que les rayons X de Röntgen, les rayons uraniques de Becquerel susciterent au départ, peu d'intérêt parmi la communauté scientifique. Il fallut attendre deux ans et les travaux de Marie Curie, pour que l'importance de la découverte de Becquerel soit mise en évidence (Figure I.1) [1].

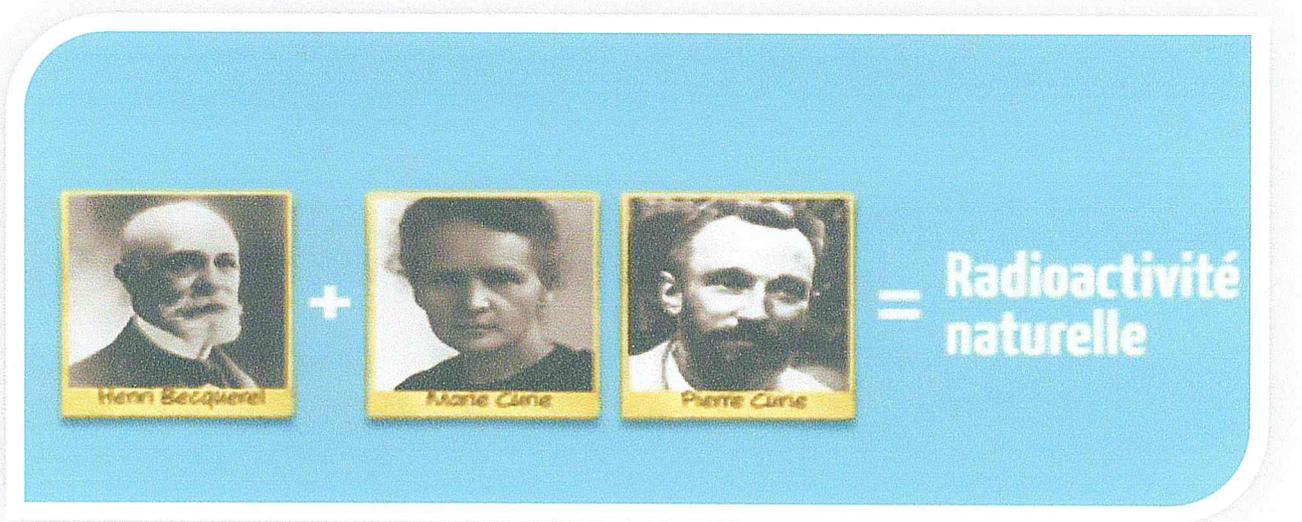


Figure I.1 : La découverte de la radioactivité naturelle

## I.2. Origines de la radioactivité naturelle

Depuis la formation de la terre, la radioactivité est présente dans toute la matière, celle qui nous entoure et celle qui compose le monde vivant. Tout est naturellement radioactif : le sol sur lequel nous marchons, l'atmosphère que nous respirons et les aliments que nous mangeons. Notre corps lui-même est radioactif.

De manière générale, la radioactivité naturelle provient de trois origines :

1. **Les rayons cosmiques** sont des flux de particules qui sillonnent l'espace de notre galaxie dans toutes les directions. Ils sont composés essentiellement d'ions. Les rayons cosmiques ont deux composantes, la première est due aux ions très énergétiques en provenance des galaxies, l'autre composante vient du soleil : le « vent solaire » est surtout constitué de protons.
2. **Les rayonnements telluriques** sont des radionucléides primordiaux qui ont existé sur la terre depuis sa création et ils sont présents dans les roches, les sols et dans beaucoup de matériaux de construction. La plupart des éléments radioactifs existant à l'état naturel appartiennent à ces trois séries de transformations (Figure I.2).

**Les séries radioactives** sont les familles radioactives de l'Uranium 238, l'Uranium 235 et du Thorium 232 de périodes radioactives très longues.

### L'uranium 238

L'uranium 238 pénètre dans l'organisme par l'alimentation et il se concentre essentiellement dans les os et les reins. L'apport par l'eau de boisson est en général négligeable. Il comporte treize principaux descendants radioactifs émetteurs  $\alpha$ ,  $\beta$ , et  $\gamma$  et aboutit à un élément stable, le  $^{206}\text{Pb}$ .

### L'uranium 235

L'uranium 235 est un émetteur  $\alpha$ , il comprend treize descendants principaux dont le dernier est le  $^{207}\text{Pb}$  qui est stable.

### Le Thorium 232

Cette chaîne radioactive se termine par le  $^{208}\text{Pb}$  (Stable), il est présent, en particulier, dans les chaînes de décroissance radioactive de l'uranium naturel. Il présente treize radio-isotopes.

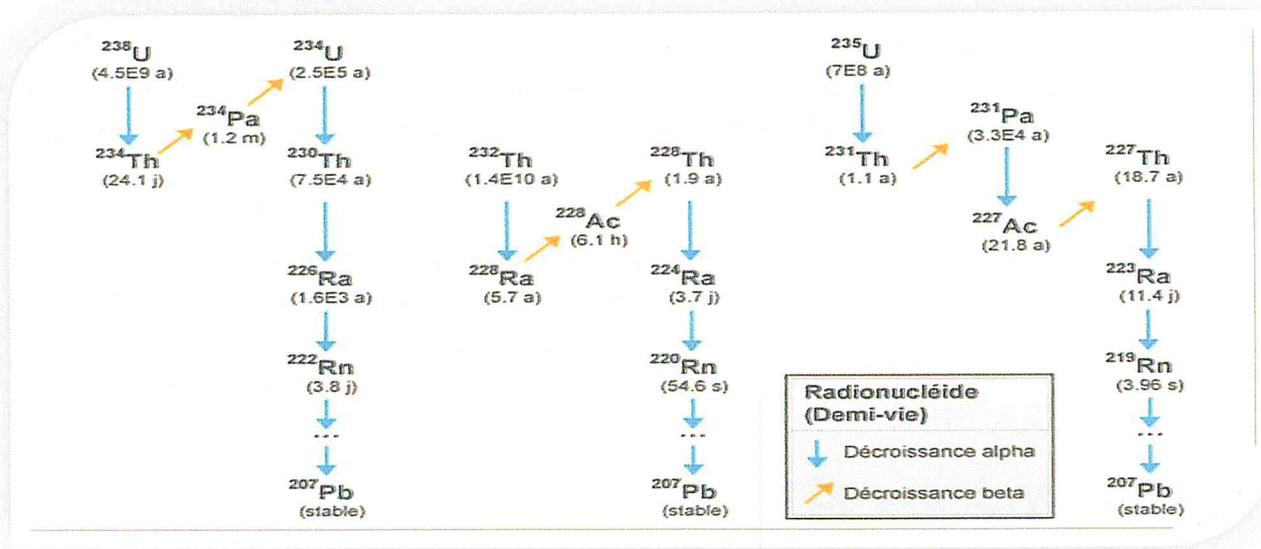


Figure I.2: Les trois séries radioactives

3. La radioactivité du corps humain l'homme est radioactif par l'ingestion des radionucléides comme le potassium 40 et le carbone 14 qui sont transférés dans les chaînes alimentaires [2].

### I.3. Qu'est-ce la radioactivité naturelle ?

La radioactivité est un phénomène naturel, physique, aléatoire qui permet aux noyaux de certains atomes instables, de revenir à la stabilité en émettant des rayonnements.

Cette instabilité peut être due soit à un excès de nucléons soit à un déséquilibre entre protons et neutrons. Cependant, dans les deux cas, les atomes sont radioactifs car ils tendent naturellement vers leur état de stabilité, par désintégration accompagnée de l'émission d'une particule  $\alpha$ ,  $\beta$ , en général, d'un rayonnement électromagnétique de haute énergie nommé rayonnement  $\gamma$ .

#### I.3.1 Le rayonnement alpha

Lorsque le noyau présente un trop grand nombre de nucléons, il tend vers son état de stabilité en émettant un noyau d'hélium ou particule  $\alpha$  (Figure I.3). Ce rayonnement interagit principalement avec les cortèges électroniques des atomes cibles et aboutit à l'excitation et à l'ionisation de la matière qu'il traverse. Il y a naissance de rayonnements secondaires.

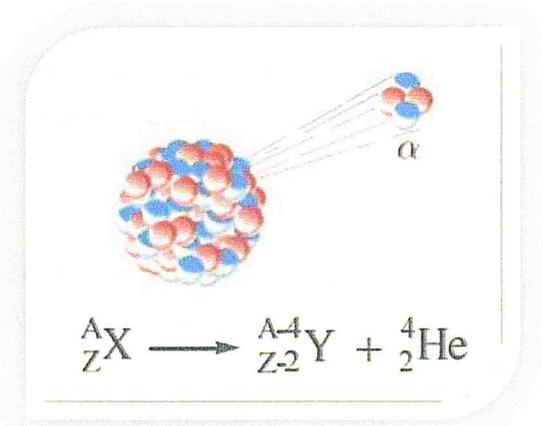


Figure I.3 : Le rayonnement alpha

alpha( $\alpha$ ), rayonnement bêta( $\beta$ ), rayonnement photonique (gamma [ $\gamma$ ] et rayons X), rayonnement neutronique (n).

Dans le cas des rayonnements ionisants, chaque source de rayonnement se distingue par sa capacité à pénétrer dans des matériaux divers, comme le papier, la peau, le plomb et l'eau (Figure I.6).

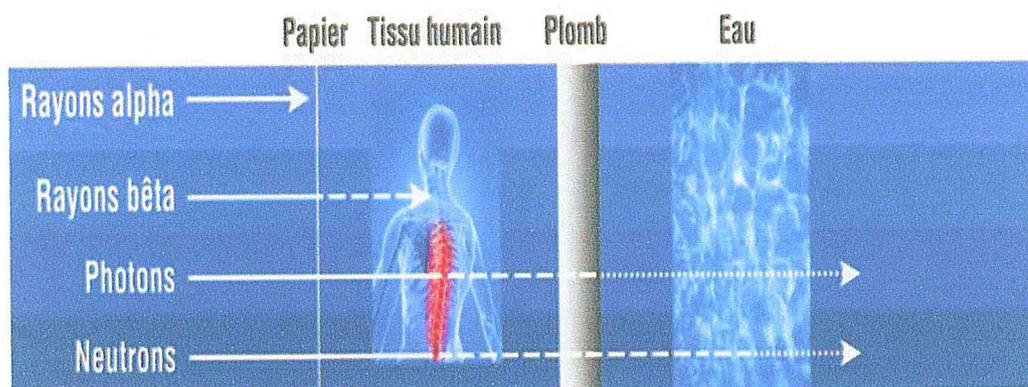


Figure I.6 : Pouvoir de pénétration de différents types de rayonnement ionisant

### I.4.2 Les rayonnements non ionisants

Le rayonnement non ionisant contient moins d'énergie que le rayonnement ionisant, il ne possède pas assez d'énergie pour produire des ions, comme la lumière visible, l'infrarouge, les ondes radio, les micro-ondes etc. (Figure I.7) [4].

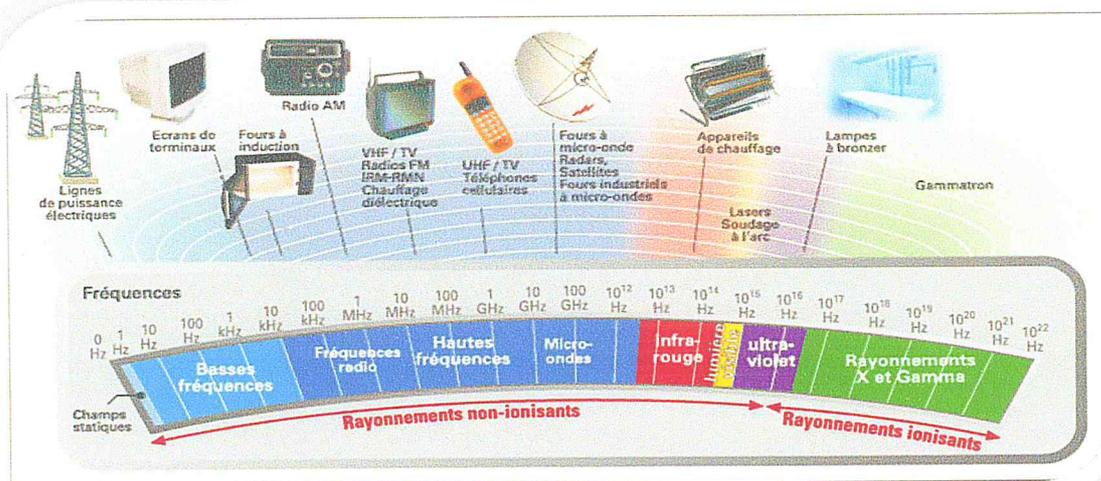


Figure I.7 : Les rayonnements non ionisants

## I.5 Radioprotection

Tous les êtres humains sont exposés aux rayonnements ionisants provenant de sources naturelles et artificielles, pour cette raison un système de radioprotection a été développé pour protéger l'homme contre les expositions inutiles ou excessives aux rayonnements ionisants.

### I.5.1 Définition de la radioprotection

La radioprotection est l'ensemble des règles, des procédures et des moyens de prévention et de surveillance visant à empêcher ou à réduire les effets nocifs des rayonnements ionisants produits sur les personnes, directement ou indirectement, y compris par les atteintes à l'environnement.

### I.5.2 L'objectif de la radioprotection

L'objectif de la radioprotection est de prévenir tout effet pathologique non aléatoire des rayonnements ionisants et aussi de limiter à un niveau considéré comme acceptable, tant pour chaque individu que pour la société, le détriment éventuel que pourrait occasionner l'existence d'effets aléatoires à faible dose.

Pour atteindre cet objectif, la CIPR (Commission Internationale de Protection Radiologique) a recommandé un programme de limitation des doses basé sur trois principes : justification, optimisation et limitation.

- **Justification** : Les avantages doivent dépasser les risques engendrés par l'exposition.
- **Optimisation** : L'exposition est à maintenir à un niveau aussi faible que possible. Dans le cadre de cette optimisation, on applique le principe **ALARA « As Low As Reasonably Achievable »** qui vise à maintenir l'exposition aux rayonnements au niveau le plus faible qu'il soit raisonnablement possible d'atteindre.
- **Limitation** : Les limites de dose définies par le législateur ne doivent pas être dépassées. Ceci inclut des limites de dose efficace aux organes pour éviter les effets déterministes et des limites de dose équivalente au corps pour éviter les effets stochastiques [5].

### I.5.3 Grandeurs dosimétriques

Pour pouvoir estimer le risque lié aux rayonnements ionisants, il y a lieu de définir certaines grandeurs dosimétriques.

La **dose** est la mesure du rayonnement reçu ou « absorbé » par une cible. Selon le contexte, on emploie les grandeurs appelées dose absorbée, dose équivalente, dose efficace.

**Dose absorbée** : c'est une grandeur fondamentale  $D$  en dosimétrie, définie par la relation :

$$D = \frac{d_e}{d_m} \dots \dots \dots (I.1)$$

Où  $d_e$  est l'énergie moyenne transmise par le rayonnement ionisant à la matière dans un élément de volume, et  $d_m$  la masse de matière dans l'élément de volume. On peut calculer l'énergie moyenne pour tout volume défini, la dose moyenne étant égale à l'énergie totale transmise dans ce volume divisé par la masse du volume. L'unité SI de dose absorbée est le joule par kilogramme (J/kg) appelé Gray (Gy).

**Dose équivalente** : Grandeur  $H_{T,R}$  définie par la relation :

$$H_{T,R} = D_{T,R} \cdot W_R \dots \dots \dots (I.2)$$

Où  $D_{T,R}$  est la dose absorbée moyenne à l'organe ou au tissu T délivrée par le type de rayonnement R et  $W_R$  le facteur de pondération radiologique pour le type de rayonnement R.

Lorsque le champ se compose de différents types de rayonnements ayant différentes valeurs de  $W_R$  la dose équivalente est donnée par la formule :

$$H_T = \sum_R W_R \cdot D_{T,R} \dots \dots \dots (I.3)$$

L'unité de dose équivalente est le joule par kilogramme (J/kg), qui en appliquant le facteur de pondération radiologique devient Sievert (Sv).

**Dose efficace** : Grandeur E définie comme étant la somme des produits des doses équivalentes aux tissus par leurs facteurs de pondération tissulaires respectifs :

$$E = \sum_T W_T \cdot H_T \dots \dots \dots (I.4)$$

Où  $H_T$  est la dose équivalente au tissu T et  $W_T$  le facteur de pondération tissulaire pour le tissu T. D'après la définition de la dose équivalente, il s'ensuit que :

$$E = \sum_T W_T \sum_R W_R \cdot W_{T,R} \dots \dots \dots (I.5)$$

Où  $W_R$  est le facteur de pondération radiologique pour le rayonnement R, et  $D_{T,R}$  la dose absorbée moyenne dans l'organe ou le tissu T.

L'unité de dose effective est le sievert (Sv). [6]

## *Chapitre II : La réglementation en matière de radioprotection*

### II.1 Cadre réglementaire

La protection radiologique des travailleurs, du public et de l'environnement est l'affaire de tous. Dans ce cadre, les risques d'exposition aux rayonnements ionisants sont encadrés par des réglementations.

« SANS REGLEMENTATION, ON NE PEUT RIEN FAIRE ! MAIS AVEC LA REGLEMENTATION, TOUT RESTE A FAIRE !! »

#### II.1.1 La réglementation nationale

Après l'indépendance, l'Algérie a connu un vide juridique dans le domaine de la radioprotection, c'est-à-dire que l'utilisation des sources de rayonnements ionisants n'était soumise à aucune réglementation. Le vide juridique a continué jusqu'à l'accident de Ain Taghout dans la wilaya de Sétif en 1978.

#### II.1.2 L'accident de Sétif

À Sétif le 5 mai 1978, l'Algérie a connu un accident causé par une source d'iridium 192 de 925 GBq. Après sa chute d'un camion, la source avait été récupérée par deux jeunes frères (trois et sept ans) qui l'utilisèrent comme jouet pendant quelques heures, avant de se la faire confisquer par leur grand-mère, à la suite de disputes.

La source se retrouva enfouie dans un panier où étaient stockés les légumes verts destinés aux repas familiaux, suspendu au mur de la cuisine et servant de dossier à l'aïeule.

Au total, l'accident a causé la mort de la grand-mère (quarante-sept ans), des aplasies prolongées graves chez trois jeunes filles de quatorze, dix-sept et dix-neuf ans et chez une jeune femme (enceinte) de vingt ans, ainsi que des brûlures radiologiques multiples chez les deux jeunes garçons ; ces sept victimes ont toutes été traitées à l'Institut Curie. La reconstitution précise des doses individuelles et de leurs distributions spatiales fut difficile et imprécise, en raison de la durée de l'exposition, des déplacements et mouvements des victimes [7].

En 1986, sur la base des recommandations de la publication 26 de la CIPR (Commission Internationale de Protection Radiologique) l'Algérie a établi pour la première fois un dispositif réglementaire à travers le **décret 86-132 du 27 mai 1986 fixant les règles de protection des travailleurs contre les risques de rayonnements ionisants ainsi que celles relatives au contrôle de la détention et de l'utilisation des substances radioactives et des appareils émettant des ionisants** [8].

Ce décret a été mis en œuvre après la promulgation de ces arrêtés en 1988. Il s'agit de [9] :

1. **Arrêté interministériel du 10 février 1988 fixant les méthodes de contrôle en matière d'utilisation des sources radioactives et des appareils émettant des rayonnements ionisants.**

2. Arrêté interministériel du 10 Février 1988 fixant les modalités de détention et d'utilisation des substances radioactives et des appareils émettant des rayonnements ionisants à des fins médicales.
3. Arrêté interministériel du 10 Février 1988 fixant les limites de doses annuelles d'exposition aux rayonnements ionisants.
4. Arrêté interministériel du 10 Février 1988 fixant les méthodes de contrôle en matière d'utilisation des sources radioactives et des appareils émettant des rayonnements ionisants.
5. Arrêté interministériel du 10 Février 1988 précisant les conditions d'utilisation des dosimètres individuels destinés au contrôle des équivalents de dose reçus par les travailleurs soumis au risque d'exposition externe.
6. Arrêté interministériel du 10 Février 1988 fixant la délimitation et la signalisation particulière des zones réglementées et interdites.
7. Arrêté interministériel du 10 Février 1988 portant classification des principaux radionucléides.
8. Arrêté interministériel du 10 Février 1988 fixant les limites dérivées de concentration dans l'air et les limites d'incorporation annuelles ainsi que les valeurs de facteurs de qualité et de débit de fluence des neutrons.

Pour prendre en compte les recommandations de la CIPR de 1990 contenues dans sa publication 60, notre pays a refondu et mise à jour le décret 86-132.

Ce processus de mise à jour de la protection contre les risques liés aux rayonnements ionisants a été achevé grâce au nouveau règlement de 2005 qui contient :

- Le décret présidentiel 05-117 du 11 avril 2005 relatif aux mesures de protection contre les rayonnements
- Le décret présidentiel 05-119 du 11 avril 2005 relatif à la gestion des déchets radioactifs
- Le décret présidentiel 05-118 du 11 avril 2005 relatif à l'ionisation des denrées alimentaires [6]

## II.2 La réglementation internationale

Les organismes internationaux et les autorités nationales responsables de la protection radiologique, de même que les utilisateurs, ont pris les recommandations et les principes émis par la CIPR comme base principale pour leurs actions de protection. Ainsi, la quasi-totalité des normes internationales et des réglementations nationales concernant la protection radiologique repose sur les recommandations de la Commission [10].

### II.2.1. Évolution des recommandations de la CIPR

La Commission Internationale de Protection Radiologique a été créée en 1928, par le Congrès international de radiologie, sous le nom de Comité International de Protection contre les rayons X et le Radium (IXRPC), à la suite d'une décision du deuxième Congrès international de radiologie. En 1950, elle a été restructurée et rebaptisée de son nom actuel [10].

La Commission est un organisme consultatif qui propose ses recommandations aux organismes réglementaires et consultatifs, principalement en fournissant des conseils sur les principes

fondamentaux sur lesquels peut reposer une protection radiologique appropriée. Depuis sa création en 1928, la Commission a régulièrement délivré des recommandations concernant la protection contre les dangers des rayonnements ionisants à trois fois au cours des 30 dernières années, en 1977, 1990, et 2007 [11].

### **II.2.2 Objectifs des Recommandations**

L'objectif principal des Recommandations de la Commission est de contribuer à un niveau de protection approprié pour les personnes et pour l'environnement contre les effets néfastes de l'exposition aux rayonnements, sans limiter de façon excessive les actions humaines souhaitables qui peuvent être associées à une telle exposition [10].

### **II.2.3 De la publication 26 (1977) à la publication 60 (1990)**

Dans la Publication 26, la Commission a, pour la première fois, quantifié les risques des effets stochastiques des rayonnements et a proposé un système de limitation des doses (ICRP, 1977), avec ses trois principes de justification, d'optimisation de la protection et de limitation des doses individuelles. En 1990, la Commission a largement révisé les Recommandations, en partie du fait de révisions à la hausse des estimations du risque de l'exposition aux rayonnements, et en partie pour concevoir un système de protection radiologique, à partir du système de limitation de dose (ICRP, 1991b). Les principes de justification, d'optimisation et de limitation de dose individuelle étaient conservés, et une distinction entre les « pratiques » et les « interventions » était introduite pour prendre en compte les différences entre les diverses situations d'exposition. De plus, l'accent était davantage mis sur l'optimisation de la protection, avec des contraintes afin de réduire l'iniquité susceptible de provenir de jugements économiques et sociétaux inhérents. Le tableau II.1 représente les limites de doses recommandées dans la publication 20 et leurs évolutions dans la publication 60.

Tableau II.1 : Comparaison de limites de dose entre la publication 26 et la publication 60 [11]

Catégories d'exposition	La recommandation 1977 (Publication 26)	La recommandation 1990 (Publication 60)
<b>LIMITES DE DOSE INDIVIDUELLE</b>		
Exposition professionnelle y compris la récupération opérations Tout organe individuel, sauf : <ul style="list-style-type: none"> <li>• Lentille de l'œil</li> <li>• Peau</li> <li>• Mains et pieds</li> <li>• Femmes enceintes</li> </ul>	50 mSv/an 500 mSv/an 300 mSv/an 20 Sv/an - Condition de travail B (<15 mSv/an, alors < ~ 10 mSv)	20 mSv / an En moyenne sur périodes définies de 5 ans <b>Chuté</b> 150 mSv / an 500 mSv / an 500 mSv / an  2 mSv à la surface de l'abdomen ou 1 mSv de l'apport de radionucléides
Exposition publique (Déclaration de Paris 1985) Tout organe individuel <ul style="list-style-type: none"> <li>• Lentille de l'œil</li> <li>• Peau</li> </ul> (1978 Stockholm Déclaration)	5 mSv/an 1 mSv/an Mais il est permis d'utiliser une filiale limite de 5 mSv par an pour quelques années à condition que la dose efficace annuelle moyenne équivalent sur toute une vie ne dépasse pas la limite principale de 1 mSv/an. 50 mSv/an -W <sub>T</sub> de 0.01	1 mSv par an Dans des circonstances particulières, une haute valeur est autorisée aussi longtemps que le moyenne sur 5 ans ne dépasser 1 mSv/an.  <b>Chuté</b> 15 mSv/an 50 mSv/an
<b>CONTRAINTES DE DOSE</b>		
Exposition professionnelle Exposition publique <ul style="list-style-type: none"> <li>• Général</li> </ul>	Aucun  Aucun	≤ 20 mSv/an < 1 mSv/an

### II.2.4 De la publication 60 (1990) à la publication 103 (2007)

Depuis la publication 60, il y a eu une série de publications qui fournit des directives supplémentaires pour le contrôle des expositions dues aux rayonnements sources. Lorsque les recommandations de 1990 sont incluses, ces rapports précisent une trentaine de valeurs numériques différentes pour les restrictions sur la dose individuelle pour circonstances différentes. De plus, ces valeurs numériques sont justifiées de nombreuses façons différentes. Il y a cependant plus de continuité que de changement dans les recommandations 2007, certaines recommandations de 1990 doivent rester parce qu'ils sont clairs, d'autres ont été mises à jour parce que la compréhension a évolué, certains articles ont été ajoutés, et certains concepts sont mieux expliqués car plus de conseils sont nécessaires. Le tableau II.2 représente les limites de doses recommandées dans la publication 60 et leurs évolutions dans la publication 103 [11].

Tableau II.2: Comparaison de limites de dose entre la publication 60 et la publication 103 [11]

Catégories d'exposition (publications)	La recommandation de 1990 et publications ultérieures	La recommandation 2007
<b>Expositions planifiées</b>		
<b>Exposition professionnelle (60, 58)</b> <b>Y compris les opérations de récupération</b> - la lentille de l'œil - peau - mains et pied - femmes enceintes, repos de grossesse (60)	<b>Limites de dose individuelles</b>  20 mSv / an en moyenne sur des périodes définies de 5 ans 150 mSv/an 500 mSv/an 500 mSv/an 2 mSv à la surface de abdomen ou 1 mSv de l'apport des radionucléides 1 mSv à l'embryon / fœtus	  Pas de changement Pas de changement Pas de changement Pas de changement  <b>Chuté</b> Pas de changement
Exposition publique (60)	1 mSv par an Dans des circonstances particulières, une valeur plus élevée est autorisée aussi longtemps comme la moyenne sur 5 ans fait ne dépasse pas 1 mSv / an	<b>Pas de changement</b>
<ul style="list-style-type: none"> <li>• Lentille de l'œil</li> <li>• Peau</li> </ul>	15 mSv/an 50 mSv/an	<b>Pas de changement</b> <b>Pas de changement</b>
Exposition professionnelle Exposition publique	<b>Contraintes de dose</b> ≤ 20 mSv/an	<b>Pas de changement</b>
<ul style="list-style-type: none"> <li>• Général</li> <li>• Élimination des déchets radioactifs</li> <li>• Longue durée de vie radioactive</li> <li>• Traitement des déchets</li> <li>• Exposition prolongée</li> <li>• Composant prolongé des nucléides à longue durée de vie</li> </ul>	< 1 mSv/an ≤ 0.3 mSv/an  < 0.3 mSv/an  <~1 & ~0.3 mSv/an ≤ 0.1 mSv/an	Pour être <1 mSv / année selon la situation <b>Pas de changement</b>   <b>Pas de changement</b>

### **II.3. Conclusion**

À la fin, on peut dire que la plupart des réglementations nationales s'appuient sur les recommandations de 1990, et ils les renouvellent selon l'évolution de ces recommandations. Cependant que nos trois décrets ont été promulgués en 2005 alors que l'ICRP a émis de nouvelles recommandations en 2007. Par conséquent, notre réglementation actuelle nécessite une mise à jour. Par ailleurs, les choses évoluent, et il est probable que de nouvelles recommandations basées sur les dernières connaissances seront émises par l'ICRP dans les toutes prochaines années. Il serait intéressant que notre prochaine mise à jour des textes réglementaires algériens soit basée sur les dernières recommandations et donc les dernières évolutions scientifiques dans le domaine de la radioprotection.

# Chapitre III : *Le phénomène NORM*

## III.1. La radioactivité naturelle renforcée NORM

Comme nous avons déjà vu, la radioactivité naturelle est présente dans toute la matière, tout notre environnement, et tous les êtres vivants. Nous vivons depuis toujours dans un océan de radioactivité naturelle.

Les concentrations de cette radioactivité sont faibles donc, elle ne pose aucun danger tant qu'elle reste naturelle. Cependant, l'activité humaine qui comprend l'extraction, la production et le traitement des produits finis et semi finie peuvent concentrer et accumuler cette radioactivité de telle sorte qu'elle représente un risque d'exposition potentiel sur l'homme et l'environnement. Il s'agit alors de NORM qui est l'acronyme (Naturally Occuring Radioactive Materials), ou bien la radioactivité naturelle renforcée.

### III.1.1 Les industries où l'on trouve les NORM

L'AIEA a identifié 12 industries touchées par les NORM. Il y a un implicite degré d'urgence radiologique dans l'ordre présenté du plus urgent en position (1) au moins urgent en position (12), mais seulement de façon préliminaire un examen approfondi de la plupart des industries n'avait pas encore débuté au moment où la liste avait été compilée. La liste des industries NORM selon l'AIEA est comme suit [12] :

- (1) Extraction et traitement du minerai d'uranium ;
- (2) Extraction d'éléments de terres rares ;
- (3) Production et utilisation du thorium et de ses composés ;
- (4) Production de niobium et de ferro niobium ;
- (5) Extraction de minerais autres que le minerai d'uranium ;
- (6) Production de pétrole et de gaz ;
- (7) Fabrication de pigments de dioxyde de titane ;
- (8) L'industrie des phosphates ;
- (9) Les industries du zircon et de la zirconne ;
- (10) Production d'étain, de cuivre, d'aluminium, de zinc, de plomb et de fer et d'acier ;
- (11) Combustion de charbon ;
- (12) Traitement des eaux

La radioactivité naturelle technologiquement renforcée engage des doses collectives et individuelles comparables aux doses de radioactivité artificielle émises par les pratiques nucléaires non accidentelles. Elle génère des volumes de déchets ou de matériaux dont l'ordre

de grandeur commun est le million de tonnes et la demi-vie le millier ou le milliard d'années. La vie des déchets radioactifs naturels est globalement beaucoup plus longue que celle des déchets radioactifs artificiels [13].

### III.2. Exposition aux rayonnements ionisants

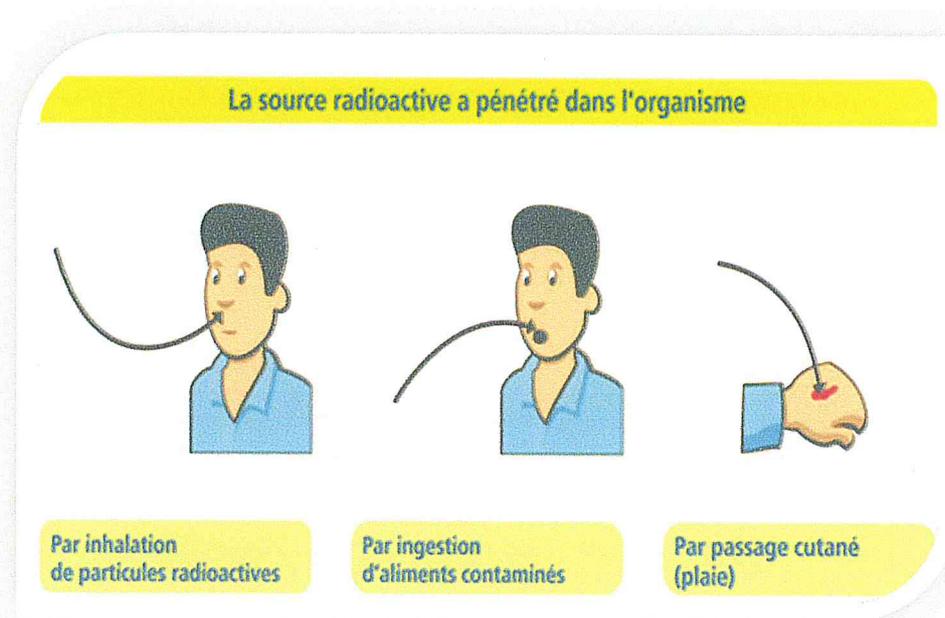
L'utilisation de substances radioactives présentent des risques spécifiques radioactifs généralement classés en deux catégories, **irradiation par voie externe** et **irradiation par voie interne** ou (contamination interne).

#### III.2.1 Irradiation externe

Il y a irradiation par voie externe lorsque le corps humain est soumis aux rayonnements émis par une source radioactive qui lui est externe. Dans ce cas, l'action directe nocive prend fin dès que l'individu quitte le champ d'irradiation. Peuvent agir par voie externe les rayonnements  $\gamma$  et  $x$ , les  $\beta$  forte énergie et les neutrons. La dose de rayonnements subie ou reçue est fonction de l'intensité de l'irradiation et du temps d'exposition.

#### III.2.2 Irradiation par voie interne ou (contamination interne)

Le deuxième mode d'irradiation résulte d'une contamination interne liée à la pénétration de radioéléments dans l'organisme c'est-à-dire à l'intérieur du corps soit par inhalation, ingestion, ou par le passage à travers la peau (Figure III.1). La contamination radioactive est par définition la souillure du milieu, des matériaux ou des êtres vivants par les matières radioactives.



**Figure III.1:** Les voies de contamination

L'irradiation externe n'existe que lorsque l'on est en présence de la source d'irradiation, par contre, l'irradiation interne se poursuit jusqu'à ce que les radionucléides soient éliminés de l'organisme par décroissance radioactive et par élimination biologique.

On définit pour chaque radioélément une période biologique qui est le temps nécessaire à l'organisme pour éliminer, par processus biologiques, la moitié de la quantité initialement absorbée.

Comme la décroissance radioactive et l'élimination biologique sont deux phénomènes qui concourent à faire décroître dans le temps l'irradiation de l'organisme, on définit alors la période effective qui est le temps requis pour que l'activité entrée à l'origine ait décrépu de moitié.

Il existe la relation suivante entre les valeurs de la période effective ( $T_E$ ) et des périodes radioactives ( $T_R$ ) et biologiques ( $T_B$ ).

$$\frac{1}{T_E} = \frac{1}{T_R} + \frac{1}{T_B} = \frac{T_R \cdot T_B}{T_R + T_B} \dots\dots\dots (III.1)$$

Pendant tout le temps où le radioélément ingéré reste fixé sur l'organe critique, les rayonnements qu'il émet vont irradier cet organe. On se trouve donc ramené à un phénomène d'irradiation mais avec une efficacité beaucoup plus grande que pour l'irradiation externe puisque les tissus sont en contact direct avec la source [5].

### III.3. Les effets des Rayonnements Ionisants

Les effets des rayonnements ionisants sur l'organisme sont de deux types. Ils résultent soit d'un risque aléatoire ou **stochastiques** soit d'un risque direct ou **déterministe** (Figure III.2).

#### III.3.1 Les effets déterministes

Les effets déterministes apparaissent de façon inéluctable lorsque la dose reçue est supérieure à un seuil et généralement peu après l'irradiation. Le délai d'apparition des effets est d'autant plus court que la dose est élevée. Le seuil d'apparition de ces effets est variable selon l'individu, certaines maladies touchant les mécanismes de réparation de l'ADN rendent les personnes atteintes plus sensibles aux effets des radiations. D'autre part, le seuil d'apparition des effets augmente avec le débit de dose et l'étalement de la dose dans le temps. Lors d'une irradiation globale, les effets se manifesteront en premier lieu au niveau des organes les plus radiosensibles (tissu hématopoïétique, cellules intestinales). Lors d'une irradiation partielle les effets dépendent de la région irradiée [14]

Il est possible de distinguer les différents effets cliniques en fonction de la dose comme suit (Tableau III.1):

**Tableau II.1 : Les différents effets cliniques en fonction de la dose [14]**

<b>La dose</b>	<b>Les effets cliniques</b>
<b>Inférieure à 0,5 Gy</b>	Aucun effet clinique n'est réellement mesurable, seule une légère modification dans la numération formule sanguine peut être observée (baisse du nombre de lymphocytes).
<b>1 - 2 Gy</b>	À partir de 1 Gy apparaissent les premiers signes digestifs caractéristiques de la phase prodromique tels que des nausées et des vomissements. Ces signes apparaissent rapidement et sont suivis de ce qu'on appelle « le mal des rayons » (malaise, asthénie, anorexie).
<b>2 - 4 Gy</b>	L'atteinte du système hématopoïétique (baisse importante des leucocytes, thrombocytopenie) nécessite une surveillance étroite afin de mettre en place une antibiothérapie rapide le cas échéant.
<b>4 - 6 Gy</b>	La dose létale 50 % chez l'adulte est estimée à 4,5 Gy en l'absence de traitement. Le tableau clinique correspond à une modification sévère de la numération formule sanguine témoignant d'une atteinte importante du système hématopoïétique.
<b>6 - 10 Gy</b>	En l'absence de traitement, la dose de 6 Gy représente la dose mortelle dans 100 % des cas. En plus des manifestations digestives, dès 8 Gy les manifestations cliniques se caractérisent par une atteinte du système pulmonaire. Le pronostic dépend de l'âge, des lésions associées ou préexistantes et du traitement.
<b>10 - 20 Gy</b>	Le décès est inéluctable dans un délai inférieur à une semaine. Les signes cliniques sont digestifs, respiratoires avec une granulopénie et une thrombocytopenie sévère.
<b>Supérieures à 30 Gy</b>	Des désordres neurologiques importants apparaissent. La mort survient dans les 48 heures.

### III.3.2. Les effets stochastiques

Les effets stochastiques ou aléatoires résultent de la modification du matériel génétique qui induit des cancers si ces modifications affectent des cellules somatiques ou des modifications phénotypiques de la descendance si elles touchent les cellules germinales. Ces effets n'ont pas de seuil et sont observables par des études épidémiologiques très longtemps après l'exposition. A la différence des effets déterministes, la gravité de l'effet ne dépend pas de la dose. Cependant, même si la relation dose-effet est plus difficile à établir que pour les fortes doses, il n'existe pas de dose seuil en dessous de laquelle il n'y a pas d'effet [14].

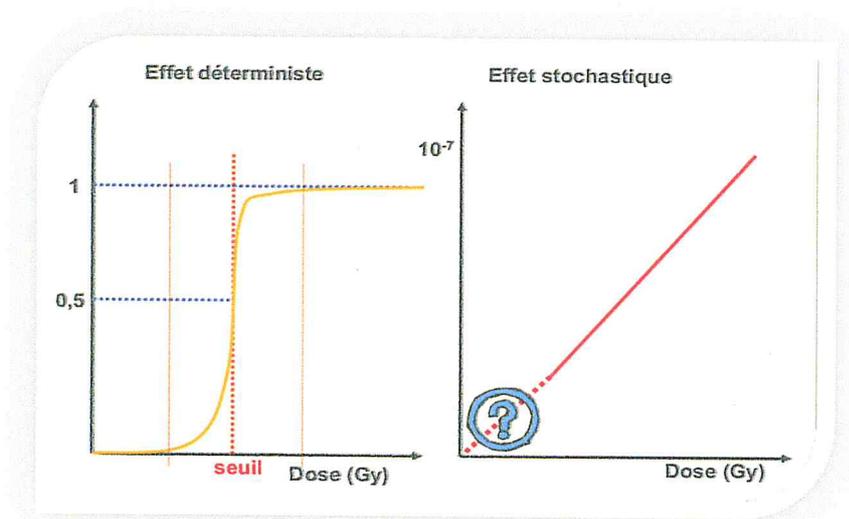


Figure III.2 : Les effets déterministes et les effets stochastiques

### III.4. NORM dans l'industrie de phosphate

Le phosphore est un élément essentiel qui compose tous les systèmes vivants, tels que le système, tissulaire, osseux et cellulaire. Le phosphore est très réactif et, par conséquent, il ne peut être retrouvé seul dans la nature. On le retrouve principalement dans les dépôts de roche contenant diverses formes minéralisées de phosphate de calcium,  $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$ . La production d'engrais phosphatés et d'aliments pour animaux constitue la principale activité commerciale dans l'industrie des phosphates. Les composés de phosphore sont également utilisés dans une grande variété de produits alimentaires, pharmaceutiques, industriels et produits domestiques. Les dépôts de phosphate contiennent les radionucléides naturels  $^{238}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$  avec leurs descendances.

La radioactivité dans les dépôts de phosphate a fait l'objet d'études depuis le début des années 1900, à laquelle il était déjà connu que les gisements de phosphate contiennent de l'uranium à des concentrations pouvant être suffisamment élevées pour avoir une valeur potentielle. L'extraction du minerai de phosphate, son traitement en produits intermédiaires et finaux ainsi que la manipulation et l'utilisation de ces produits peuvent tous donner lieu à des expositions des travailleurs et même des membres du public. Les résidus associés au traitement de phosphate peuvent également donner lieu à des expositions. Lorsque la roche phosphatée est

digérée avec un acide pour produire de l'acide phosphorique (le principal point de départ pour la fabrication de plusieurs principaux produits phosphatés), certains radionucléides, notamment les isotopes du radium, se concentrent dans les résidus, par conséquent, d'un point de vue de radioprotection, ces résidus de procédé sont potentiellement plus préoccupants que le minerai de phosphate lui-même.

Les réserves mondiales de phosphate sont estimées à 163 milliards de tonnes [15]. La plupart de ces minerais sont d'origine sédimentaire. Le tableau III.2 représente la production et les réserves de phosphate par pays [15]. Dans le cas de l'Algérie, on estime à 2 millions de tonnes de minerais de phosphates produits en 2010, avec une réserve estimée de 2.2 milliard de tonnes.

**Tableau III.2 : Production et réserves de phosphate par pays [15]**

<b>Pays</b>	<b>Mine estimée PRODUCTION EN 2010 (en millions de tonnes)</b>	<b>Réserves (en millions de tonnes)</b>
<b>Chine</b>	65	3700
<b>États Unis</b>	20.1	1400
<b>Maroc et Sahara occidental</b>	26 10	50 000 1300
<b>Fédération de Russie</b>	1.5	100
<b>Tunisie</b>	6	1500
<b>Jordanie</b>	5.5	340
<b>Brésil</b>	5	100
<b>Egypte</b>	3	180
<b>Israël</b>	2.8	1800
<b>République arabe syrienne</b>	2,8	82
<b>Australie</b>	2,3	1500
<b>Afrique du Sud</b>	2	2200
<b>Algérie</b>	0.8	60
<b>Togo</b>	0.7	5
<b>Canada</b>	0.65	180
<b>Sénégal</b>	9.5	620
<b>Total (arrondi)</b>	176	65 000

### III.5. Généralité sur la réglementation des NORM

L'exposition aux sources naturelles est généralement considérée comme une situation d'exposition existante, ce qui signifie qu'elle n'entre pas dans le champ d'application de la réglementation en termes de situations d'exposition planifiées. Cependant, pour certaines activités industrielles donnant lieu à l'exposition à des sources naturelles, le BSS (Basic Safety Standard) prévoit les exigences prévues pour les situations d'exposition planifiées. Cette situation dépend principalement des concentrations d'activité des radionucléides d'origine naturelle dans le matériau donnant lieu à l'exposition.

Les exigences pour planifier les situations d'exposition s'appliquent si la concentration d'activité de tout radionucléide des chaînes de désintégration de l'uranium ou du thorium est supérieure à 1 Bq/g ou que la concentration de l'activité du  $^{40}\text{K}$  est supérieure à 10 Bq/g.

À la suite de ce critère, l'industrie des phosphates est identifiée comme étant parmi les activités industrielles dont les activités sont susceptibles d'être soumises aux exigences des situations d'exposition planifiée.

Il est important de noter que l'utilisation de produits contenant des radionucléides d'origine naturelle, tels que les engrais, les revêtements de sol et les matériaux de construction, est toujours soumise aux exigences des situations d'exposition existantes, indépendamment des concentrations d'activité.

Une évaluation initiale est appliquée au processus, aux matériaux utilisés et aux expositions associées. Pour les industries concernées par le traitement des NORM, on considère que les travailleurs et les membres du public sont soumis aux deux types d'exposition, l'exposition externe due aux rayonnements gammas émis par le matériel de traitement et de l'exposition interne due à l'inhalation de radionucléides présents dans les poussières. La prise en compte de l'exposition interne par inhalation de  $^{222}\text{Rn}$  et/ou  $^{220}\text{Rn}$  émis par le matériel de traitement (conduisant à une exposition aux descendants de ces radionucléides) peut également être nécessaire lors de l'exploitation de certains minerais. L'exposition interne par ingestion peut également être considérée pour les membres du public (principalement en raison des voies d'eau), mais, il est peu probable que cela puisse concerner les travailleurs dans des circonstances opérationnelles normales [15].

### III.6. NORM dans les minerais de phosphate

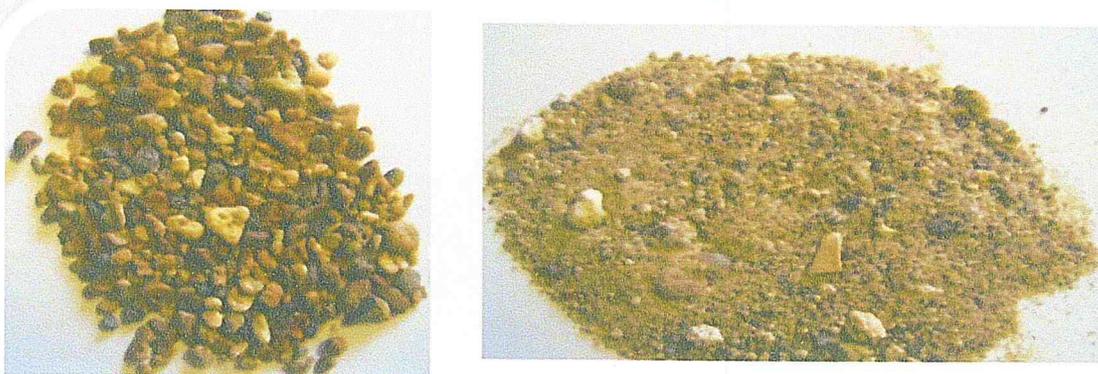
La plupart des gisements de phosphate sédimentaire exploités commercialement sont situés à quelques dizaines de mètres de la surface de la Terre. Ces dépôts sont généralement minés par des techniques à ciel ouvert, bien que certaines mines souterraines existent.

Globalement, les concentrations d'activité dans les minerais de phosphate actuellement exploités sont situées entre 0,1 et 3 Bq/g pour les radionucléides dans la série de désintégration de  $^{238}\text{U}$  et entre 0,1 et 0,4 Bq/g pour les radionucléides dans la série de désintégration du  $^{232}\text{Th}$ . (Tableau III.3)

**Tableau III.3:** Concentration de l'uranium dans le minerai de phosphate par pays [15]

Pays	Concentration de l'uranium dans le minerai de phosphate
Algérie	0.011-0.014
Brésil	0.008
Inde :	0.04
Mussorie	0.03-0.08
Karnataka	0.005-0.015
Israël	0.012-0.015
Jordanie	0.024
Maroc	0.009-0.014
Tunisie	0.023
Etats-Unis :	0.005-0.01
Floride	0.015-0.018
Caroline du Nord	0.008

Pour les concentrations relativement faibles de radionucléides dans les séries de désintégration de  $^{238}\text{U}$  et du  $^{232}\text{Th}$  dans le minerai de phosphate et le phosphate de roche (Figure III.3), le débit de dose dépend plutôt de la concentration d'activité de la matière que de la quantité totale ou la géométrie. Le tableau III.4 représente le débit de dose gamma à proximité de grands volumes de minerai de phosphate et roches de phosphate et l'estimation des concentrations d'activité des radionucléide [15].

**Figure III.3 :** Le minerai et la roche de phosphate

**Tableau III.4:** Débit de dose gamma proximité de grands volumes de minerai de phosphate et de roches de phosphate et l'estimation des concentrations d'activité des radionucléides [15].

Source	Concentration de l'activité (Bq/g)			Débit de dose			
	U <sup>238</sup>	Th <sup>232</sup>	K <sup>40</sup>	Total (μSv/h)	Contribution au total		
					U <sup>238</sup>	Th <sup>232</sup>	K <sup>40</sup>
<b>Matériau d'origine sédimentaire</b>							
<b>Minerai de phosphate :</b>							
Soudan (Uro)	4.0(Ra <sup>226</sup> )	0.01	0.06	1.6	>99%	<1%	<1%
Soudan (Kurun)	0.4(Ra <sup>226</sup> )	0.01	0.14	0.2	95%	2%	3%
USA (Floride centrale)	0.8-3.1	0.02	0.003- 0.019	0.3-1.2	98%	2%	1%
Égypte	0.4	0.02	0.05	0.2	91%	8%	<1%
<b>Phosphate de roche</b>							
Maroc	0.9-1.9	0.01-0.03	0.03	0.4-0.8	98%	2%	<1%
Togo	1.0-1.5	0.03-0.1	0.01-0.03	0.4-0.6	93%	7%	<1%
USA (Floride centrale) (Caillou)	1.3-2.5	0.03	0.03	0.3-0.7	97%	3%	<1%
USA (Floride centrale) (Concentrer)	0.7-1.8	0.02	0.03	0.3-0.7	97%	3%	<1%
Egypte	0.4-0.5	0.02-0.04	0.02	0.2	92%	7%	<1%
Algérie	0.6	0.06	0.02	0.3	87%	12%	<1%
Jordanie	0.8-1.0	0.002-0.02	0.01-0.15	0.3-0.4	98%	1%	<1-2%
Tanzanie (Arusha)	4.1-4.6	0.61-0.63	0.29	2-2.2	83%	17%	<1%
Tunisie	0.8	0.03	0.03	0.3	95%	5%	<1%
<b>Matériel d'origineignée</b>							
<b>Minerai de phosphate:</b>							
Fédération de Russie (Kola)	0.07	0.1	0.1	0.1	31%	65%	4%
Afrique du Sud	0.2	0.4	0.003- 0.02	0.3	25%	75%	<1%

### III.7 NORM dans la production d'acide phosphorique

La digestion de la roche phosphatée avec de l'acide sulfurique est de loin le procédé humide le plus couramment utilisé pour la production d'acide phosphorique.

La digestion avec l'acide chlorhydrique est utilisée dans une moindre mesure pour la production d'acide phosphorique de haute pureté qui est utilisé dans les produits alimentaires.

Au cours du processus de digestion, 90 à 95% de l'uranium dans la roche phosphatée migre vers l'acide phosphorique. D'autre part, la plus grande partie du radium dans la roche phosphatée migre vers le phosphogypse (résidu de la production). La quantité exacte dépend de plusieurs facteurs tels que les conditions du procédé et les caractéristiques de la roche phosphatée. Le tableau III.5 représente la concentration de l'uranium dans l'acide phosphorique [15].

**Tableau III.5:** Concentration de l'uranium dans d'acide phosphorique [15]

<b>Pays</b>	<b>Concentration d'uranium en U<sub>3</sub>O<sub>8</sub> (%)</b>
<b>Algérie</b>	0.013
<b>Brésil</b>	0.008
<b>Israël</b>	0.0165
<b>Jordanie</b>	0.0165
<b>Maroc</b>	0.014
<b>Tunisie</b>	0.008
<b>Etats-Unis :</b>	
<b>Floride</b>	0.019
<b>Caroline du Nord</b>	0.008

### III.7.1 Le phosphogypse

La digestion de la roche phosphatée avec de l'acide sulfurique génère comme produits, l'acide phosphorique et le phosphogypse (Figure III.4). Pour chaque tonne de  $P_2O_5$  produite sous forme d'acide phosphorique, une masse sèche de 4 à 6 tonnes de phosphogypse est produite [15].



Figure III.4: Phosphogypse

## III.8 L'industrie de phosphate dans l'Algérie

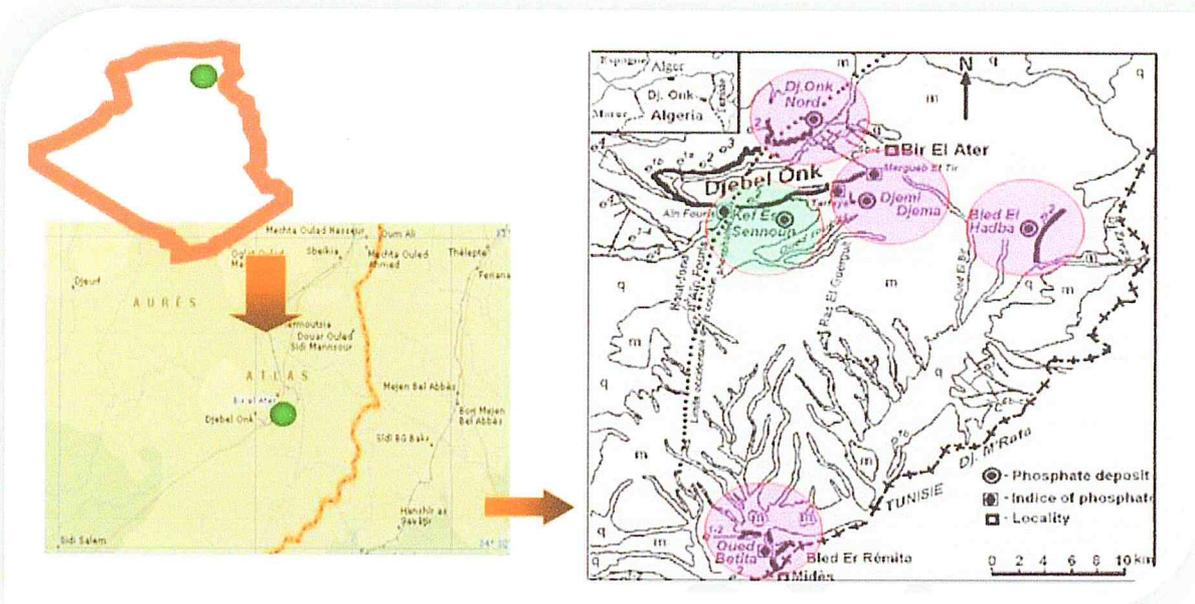
### III.8.1 Introduction

L'industrie minière est une activité qui a pour objet l'extraction et le traitement de différents minerais qui représente un pôle industriel et économique. Elle joue un rôle important dans l'économie mondiale. L'Algérie est un pays riche en matières premières utiles dont la majorité n'est pas encore mise en valeur. Le sol algérien contient des réserves de minerais de fer, phosphate, plomb, zinc, cuivre, baryte, argiles, pouzzolane, marbre et autres qualités en gypse et calcaire.

Le complexe minier de **DJEBEL ONK** (Figure. III.5), est spécialisé dans l'exploitation et le traitement des phosphates. Il appartient au groupe SOMIPHOS, les réserves de ces derniers sont de l'ordre de quelques milliards de tonnes. Le grand gisement de Djebel Onk, au Sud de Tébessa, exploité depuis 40 ans, renferme environ la moitié de ces réserves/ressources.

Les principaux gisements de phosphate sont [16] :

- Djebel Onk Sud : 500 Mln tonnes, 24 - 30 % en P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> et 2-3% en MgO
- Djebel Onk Nord : 100 Mln tonnes, 20-26 % en P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> et 3.1 % en MgO
- M'Zaita : 29 Mln tonnes, 23 % - 31% en P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>
- Ras El Oued : 0.7 Mln tonnes, 26 % - 27% en P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>
- El Kouif : 27 Mln tonnes, 25 % - 30 % en P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>
- Djebel Dyr : 8 Mln tonnes



**Figure. III.5 :** Carte de géographie des sites des mines de phosphates en Algérie

### III.8.2 Le phosphate

Le phosphore est un élément peu abondant dans l'écorce terrestre. Il n'est jamais à l'état pur. Il s'agit d'un élément indispensable à la vie puisqu'il entre dans la composition du noyau des cellules de tous les êtres vivants. Le phosphore est, en général, associé à l'oxygène pour former le radical des phosphates PO<sub>4</sub>.

Pour avoir une idée de la complexité des minéraux phosphatés, il convient de rappeler que : [16]

- Le radical PO<sub>4</sub> peut se combiner avec plus de 30 éléments.
- Il peut se produire un grand nombre de substitutions entre ions similaires.
- Pratiquement tous les éléments (quelquefois en traces) peuvent se retrouver dans ces minéraux.
- Les substitutions P-As-P entre phosphates et arsenates sont très communes.
- À des températures élevées, des substitutions entre phosphates et silicates restent possibles.

### III.8.3 Aperçu sur la production du phosphate Algérien

Les ressources de la production de phosphates en Algérie sont localisées dans le gisement de Djebel Onk, situé dans la wilaya de Tébessa. D'autres gisements de faible intérêt économique aux ressources limitées ou épuisées, ont été exploités, puis abandonnés au cours de la première moitié de ce siècle.

Il s'agit du gisement du Kouif dont la production a atteint plus de 500 000t/an au cours des années 50 et qui est devenue insignifiante après l'indépendance. La consommation nationale de phosphate naturel a stagné depuis une vingtaine d'années à un niveau fluctuant entre 200000 et 400 000 tonnes/an [16].

### III.8.4 Situation géographique de Djebel Onk

La région de Djebel Onk est située au Sud-Est de l'Algérie, à 100 km de la Wilaya de Tébessa et à 20 km de la frontière Algéro-Tunisienne, sur la route qui relie Tébessa à El Oued. Cette région constitue la limite géographique naturelle entre les hauts plateaux constantinois et le domaine saharien [16] (Figure III.6).

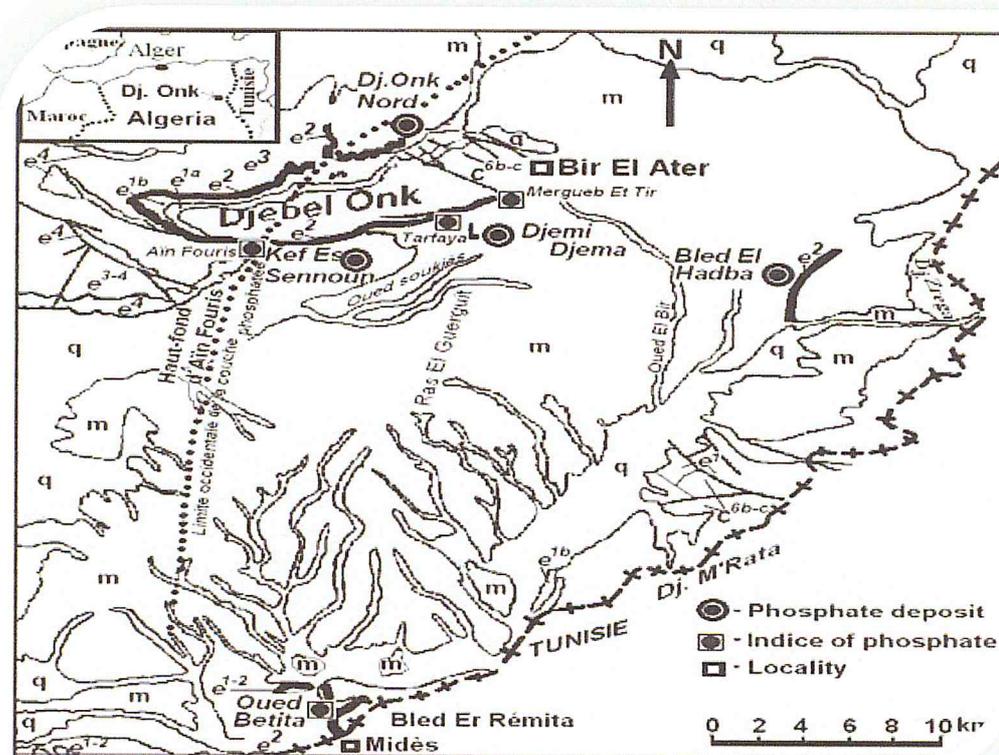


Figure III.6: Carte géographique de Djebel Onk

### III.8.5 Les différents gisements de phosphate de Djebel-Onk

La région de Djebel Onk présente une série de six gisements qui sont soumis à l'expertise, trois sont attendants à l'exploitation (Djemi Djema Est et Ouest et Kef Es Sennoun) et trois en sont éloignés de 6 à 35 km (Djebel Onk nord, Bled el Hedba, Oued Betita) [16].

1. **Le gisement de Djemi Djema** : exploité depuis 1965 par l'entreprise FERPHOS est situé à 7 km à l'ouest de la ville de Bir EL Ater, ville située à 20 km de la frontière Algéro-tunisienne.
2. **Les gisements de Djemi Djema Est et Ouest** : ils s'étendent jusqu'à environ 1 kilomètre au Nord-Ouest de celle-ci.
3. **Le gisement potentiel de Kef Es Sennoun** : est situé à 2 km de l'Ouest de Djemi Djema et à 1km de l'extrémité occidentale de la carrière du gisement de Djemi Djema Ouest.
4. **Le gisement potentiel de Djebel Onk Nord** :est situé à 6 km au Nord du centre minier de Djemi Djema. Il présente les meilleures ressources en phosphates dans tout le bassin phosphaté de Djebel Onk.
5. **Le gisement potentiel de Oued Betita** : est le plus éloigné de tous les gisements étudié, il est situé à 35 km au sud de centre minier du gisement Djemi Djemaet distant de 1 km de la série phosphatée de la Mide en Tunisie.
6. **Le gîte de Bled El Hadba** : Situé à 14 km au Sud-Est des gisements du flanc de DjebelOnk (Djemi Djema et Kef Es Sennoun) et à 6 km de la frontière Algéro-tunisienne.

### III.8.6 Les caractéristiques minéralogique et chimique du minerai de Djebel Onk

Les études minéralogiques préliminaires aux essais d'enrichissement du minerai de Djebel Onk, ont montré que trois composants principaux constituent le tout-venant : des particules de phosphate apatitique (82%), une exo-gangue carbonatée dolomitique (11.5%) et une exo-gangue argilo siliceuse (5 à 6 %). La composition chimique diffère d'un gisement à un autre, le **tableau III.6** Représente la composition chimique du minerai de phosphate de Djebel Onk [17].

**Tableau III.6** : Composition chimique du minerai de phosphate de Djebel Onk [17]

Composant chimique	Formule chimique
Pentoxyde de phosphate	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>
Oxyde calcium	CaO
Oxyde de magnésium	MgO
Dioxyde de carbone	CO <sub>2</sub>
Fluore	F
L'eau	H <sub>2</sub> O

### III.9 Les types de mines

Il existe deux types de mine, à **ciel ouvert** et mine **souterraine**. Le choix du type de mines dépend de différents facteurs tels que la profondeur du gisement, l'empreinte au sol et les coûts d'extraction [18].

- **La profondeur du gisement** : Si le gisement est plus près de la surface du sol, on privilégiera la mine à ciel ouvert.

- **L’empreinte au sol (la trace visible laissée par la mine) :** L’idée est de minimiser l’impact environnemental. Par exemple, si la mine se trouve dans une réserve faunique, on privilégiera la mine souterraine.
- **Les coûts d’extraction :** Si la quantité de mort-terrain (ou de terre végétale et de roche stérile) à enlever est trop importante, cela augmente les coûts. On privilégiera donc la mine souterraine.

### III.9.1 Mine à ciel ouvert

Dans une mine à ciel ouvert (Figure III.7), on creuse une fosse en spirale et on forme des bancs de deux à quinze mètres qui seront dynamités pour extraire le minerai, lequel sera chargé par des pelles et transporté jusqu’au concentrateur par d’immenses camions pouvant contenir des centaines de tonnes de minerai.

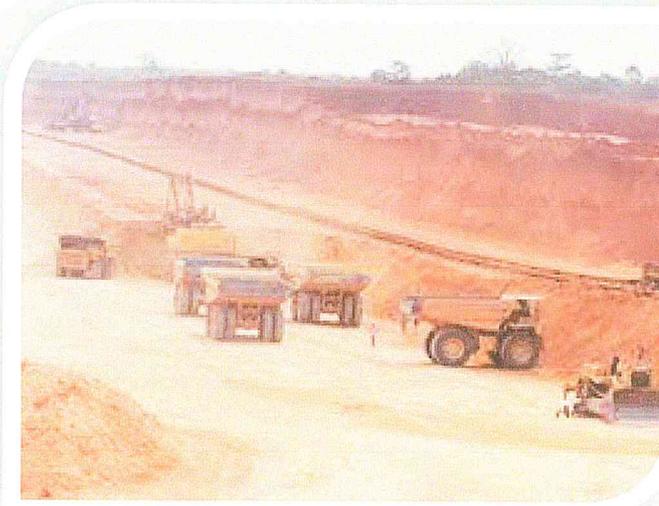


Figure III.7: Mine à ciel ouvert

### III.9.2 Mine souterraine

Visuellement, une mine souterraine (Figure III.8) peut ressembler à une fourmilière. En réalité, il s'agit d'un immense réseau de tunnels verticaux et horizontaux permettant d'atteindre le gisement minier. Une fois extrait, le minerai sera remonté à la surface du puits et dirigé vers le concentrateur.



Figure III.8 : Mine souterraine

La mine de Jebel Onk est une mine à ciel ouvert (Figure.III-9)



Figure III-9 : Mine de Djebel Onk

### III.9.3 Aperçu sur la société des phosphates et la production annuelle

#### ✚ FERPHOS

L'entreprise nationale du fer et du phosphate FERPHOS est l'une des plus importantes entreprises minières en Algérie. Elle exploite dans ses activités d'exploitation des mines de phosphate, de fer et de pouzzolane [17].

#### ✚ SOMIPHOS

La Société des Mines de Phosphates est une filiale de l'entreprise FERPHOS, elle a été créée en janvier 2005, suite à la réorganisation de FERPHOS. SOMIPHOS est une société par actions à capital public, détenu à 100% par FERPHOS. Elle a pour missions la recherche, l'exploitation, le traitement, l'enrichissement, la transformation le transport et la commercialisation des phosphates et produits connexes ou analogues.

SOMIPHOS, extrait ainsi le phosphate brut du sol des carrières à ciel ouvert dans le bassin phosphaté de Djebel Onk. Le minerai est par la suite criblé, lavé et séché. Une fois traité, le minerai est alors expédié aux installations portuaires de Annaba, soit par voie ferrée ou par transport routier. La totalité de la production est malheureusement exportée, comme matière première, à destination de plusieurs pays à travers le monde [17].

### III.9.4 Les domaines d'application des minerais de phosphate

#### Les engrais [17]

Il s'agit essentiellement de phosphate moulu, de phosphate calciné, et de superphosphates.

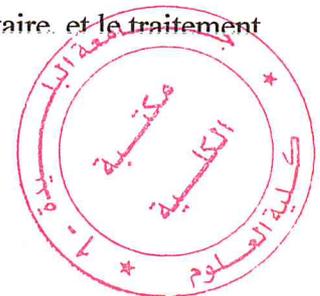
- Les phosphates moulus sont obtenus par broyage très fin de minerai de phosphate, leur teneur moyenne varie entre 26 et 33 % de  $P_2O_5$ .
- Les phosphates calcinés sont obtenus après broyage et calcination du phosphate à haute température de l'ordre de  $600^{\circ}C$  à  $1000^{\circ}C$ . Ils sont de moins en moins utilisés à cause du coût énergétique.
- Le superphosphate simple (SSP) est obtenu par attaque du phosphate par acide sulfurique, c'est un engrais à bas titre (18% de  $P_2O_5$ ).
- Le triple superphosphate est obtenu par réaction entre le phosphate et l'acide phosphorique, c'est un engrais d'un seul élément fertilisant contenant 46 % de  $P_2O_5$ .

#### Les applications techniques [17]

- Sont utilisés juste en agriculture.

#### Utilisation de l'acide phosphorique [17]

- La fabrication d'engrais super phosphate (la matière première peut alors être sous forme d'acide super phosphorique).
- Le nettoyage des équipements de production de l'industrie alimentaire, et le traitement des eaux usées.



# Chapitre IV : La Spectrométrie Gamma

## Introduction

Le minerai de phosphate utilisé dans la production des engrais, l'acide phosphorique, et d'autres produits phosphatés, induit un vrai problème des NORM, dû à la présence de l'uranium et du thorium. Les minerais de phosphate sont caractérisés par des concentrations en uranium assez significatives de l'ordre de quelques Bq/g.

Dans ce chapitre, nous exposons un aperçu sur les techniques d'analyse nucléaire. Nous décrivons aussi la technique de mesure utilisée pour quantifier la radioactivité dans nos échantillons ainsi que les préparations préalables nécessaires avant que les échantillons soient analysés. Par la suite, nous décrivons de protocole utilisé dans la production du phosphogypse au niveau du laboratoire à partir du minerai de phosphate. Enfin, nous déterminons la concentration des NORM dans le minerai de phosphate ainsi que dans le phosphogypse afin de pouvoir évaluer le risque radiologique dû à la présence des NORM sur les travailleurs (estimation de dose).

## IV.1 Analyse nucléaire

Plusieurs techniques sont utilisées pour l'analyse nucléaire, telles que la spectrométrie alpha, la scintillation liquide, le comptage Alpha-Bêta total, la spectrométrie gamma, etc. Chaque technique présente des avantages pratiques, techniques, et économiques et bien sûr des inconvénients. Le choix d'une technique d'analyse est basé sur les buts recherchés et les limites physique de chaque technique. La technique utilisée dans ce modeste travail est la **spectrométrie gamma**.

### IV.1.1 Scintillation liquide

Le principe de fonctionnement d'un scintillateur consiste à détecter des photons lumineux émis par les molécules scintillantes, consécutivement à leur excitation provoquée par l'interaction avec une particule ionisante. Cette technique permet la mesure de l'activité des radionucléides émettant des rayonnements de très basse énergie. L'inconvénient majeur néanmoins réside dans le très faible rendement énergétique et la non-linéarité de l'émission lumineuse des particules ionisantes de très basse énergie. [19].

### IV.1.2 Alpha-Bêta total

La mesure des émetteurs alpha ou bêta est la plus délicate à mettre en pratique car elle exige un traitement chimique et / ou radiochimique qui conduit à la séparation des radioéléments du reste de la matrice. Ce type de compteur destiné au comptage rapide et sensible d'échantillons de faible activité alpha ou bêta, permet une détermination quantitative des radionucléides présents dans l'échantillon à analyser.

### IV.1.3 Spectrométrie alpha

La spectrométrie alpha, fondée sur l'interaction de ce rayonnement avec la matière (sous vide), est une technique utilisée pour la détection, l'identification et la détermination de l'activité des radionucléides émetteurs alpha. Cette technique d'analyse est très précise mais

malheureusement destructive et longue dans sa mise en œuvre. En effet, elle nécessite un passage par des étapes à savoir :

- Séparation chimique du radionucléide à mesurer du reste de la matrice, cette première étape est très délicate basée sur des protocoles chimiques longs (jusqu'à une semaine) et spécifiques à chaque radionucléide. Elle constitue donc une étape primordiale pour garantir la mesure [20],
- Réglage des paramètres de fonctionnement et étalonnage en énergie et en efficacité de la chaîne,
- Calcul du rendement chimique,
- etc.

#### IV.1.4 Spectrométrie gamma

La spectrométrie gamma est une technique d'analyse nucléaire, non destructive, multi-élémentaire et très sensible. Elle est utilisée pour identifier des éléments radioactifs par la mesure de l'énergie et du nombre des rayonnements gamma émis par les échantillons [21].

Cette technique d'analyse non destructive est qualitative et quantitative. L'analyse qualitative est basée sur l'identification des énergies des rayonnements gamma émis, et l'analyse quantitative est basée sur la mesure de l'efficacité du rayonnement gamma qui est proportionnelle à l'activité spécifique de radioélément dans l'échantillon [22].

##### IV.1.4.1 Principe de la spectrométrie gamma

Le principe de la détection d'un photon gamma est basé sur la mesure de l'énergie qu'il a cédée (partiellement ou totalement) au matériau sensible via un des mécanismes d'ionisation. Lorsque les photons traversent la matière, ils peuvent subir différents types d'interactions en fonction de leur énergie et du milieu traversé (densité, type d'atome, etc.) : l'effet **photoélectrique**, la **diffusion Compton** (dite aussi inélastique ou incohérente), et la **production de paires électron-positron** (Figure IV.1). Ces trois interactions sont décrites ci-dessous [23].

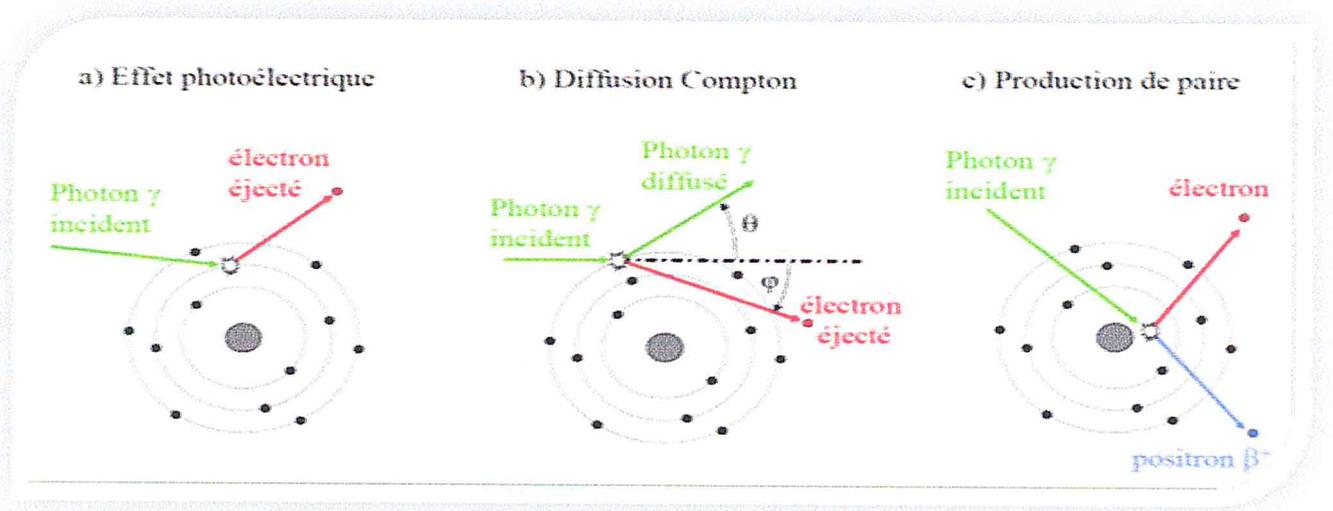


Figure IV.1: Principales interactions des photons gamma avec la matière.

#### IV.1.4.1.a Effet photoélectrique

Il consiste en l'absorption complète d'un photon par un atome, l'énergie du photon étant transférée à un électron du cortège atomique qui se trouve éjecté. On qualifie alors cet électron de photoélectron. Celui-ci emporte une énergie cinétique :

$$E = h\nu - E_l \dots\dots\dots\text{IV.1}$$

Où  $h\nu$  est l'énergie du photon incident et  $E_l$  l'énergie de liaison de l'électron dans l'atome. 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, de quelques keV pour les matériaux légers à quelques dizaines de keV pour les matériaux lourds [23].

#### IV.1.4.1.b Effet Compton

Il s'agit de la diffusion inélastique d'un photon sur un électron du cortège atomique que l'on peut considérer comme libre (l'énergie de liaison de l'électron est négligée). Il s'ensuit un photon diffusé avec un changement de direction et d'énergie ainsi que le transfert d'une partie de l'énergie du photon incident à l'électron. L'énergie transférée à l'électron se déduit des lois de conservation de l'impulsion et de l'énergie

$$E_{e^-} = \frac{h\nu}{1 + \frac{m_e c^2}{h\nu(1 - \cos\theta)}} \dots\dots\dots\text{IV.2}$$

Où est l'énergie de masse au repos de l'électron,  $\theta$  l'angle de diffusion du photon et  $h\nu$  l'énergie du photon incident. Comme l'indique la formule précédente, l'énergie transférée dépend de l'angle de diffusion du photon ; il y a alors deux cas extrêmes : pour de faibles angles ( $\theta = 0$ ), l'énergie du photon diffusé est très proche de celle du photon incident, l'électron n'emporte que peu d'énergie, pour les grands angles ( $\theta = \pi$ ), l'énergie transférée à l'électron vaut :

$$E_{e^-} = \frac{h\nu}{1 + \frac{m_e c^2}{2 h\nu}} \dots\dots\dots\text{IV.3}$$

L'énergie de l'électron est alors maximale mais elle reste inférieure à l'énergie du photon incident. Le spectre en énergie des électrons secondaires produits par diffusion Compton se présente sous la forme d'un fond continu appelé fond Compton qui s'étend de 0 à l'énergie maximale de l'électron, où l'intensité chute brusquement pour former le front Compton. Cette distribution en énergie est caractéristique de l'effet Compton (Figure IV.2) [23].

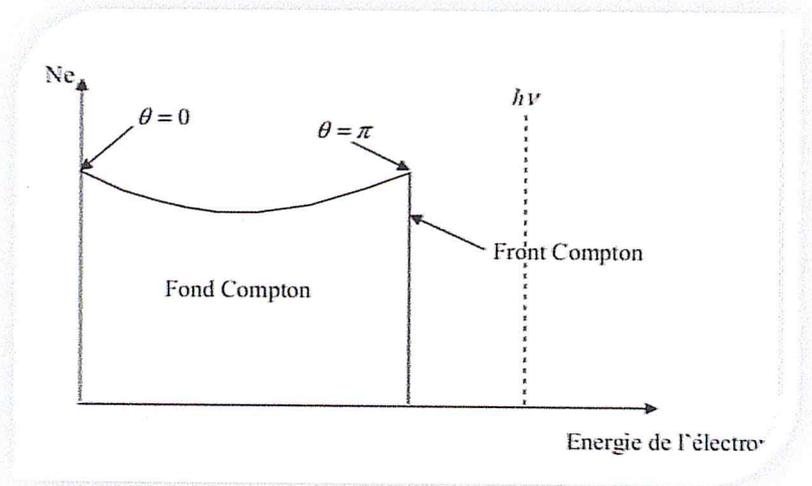


Figure IV.2 : Spectre en énergie d'électrons suite à des diffusions Compton

#### IV.1.4.1.c Création de paires

Ce phénomène consiste en la disparition d'un photon et la création d'un positron et d'un électron. On parle aussi de matérialisation d'un photon en un électron et un positron. C'est une réaction à seuil qui n'est possible que pour des énergies des photons incidents supérieures à  $2m_e c^2 = 1,022 \text{ MeV}$ . L'excédent d'énergie étant emporté par l'électron et le positron sous forme d'énergie cinétique [23] :

$$E_{e^+} = E_{e^-} = \frac{1}{2}(h\nu - 2m_e c^2) \dots \dots \dots \text{IV.4}$$

#### IV.1.4.2 Atténuation des photons dans la matière

Lorsqu'un faisceau de photons gamma pénètre dans un milieu, il subit une atténuation en passant par la matière. Cette atténuation est liée à des interactions élémentaires entre les photons incidents et les constituant du milieu, ces interactions peuvent conduire à une absorption en trois mécanismes distincts dans l'importance relative dépend de la nature de matériau absorbant ( $Z$ ) et de l'énergie des photons incidents (Figure IV.3). Les rayonnements gamma sont absorbés selon la loi exponentielle [23]:

$$I(d) = I_0 e^{-\mu d} \dots \dots \dots \text{IV.5}$$

Où  $\mu$  est le coefficient d'atténuation linéique donné en  $\text{cm}^{-1}$ ,  $d$  est l'épaisseur du milieu en cm.

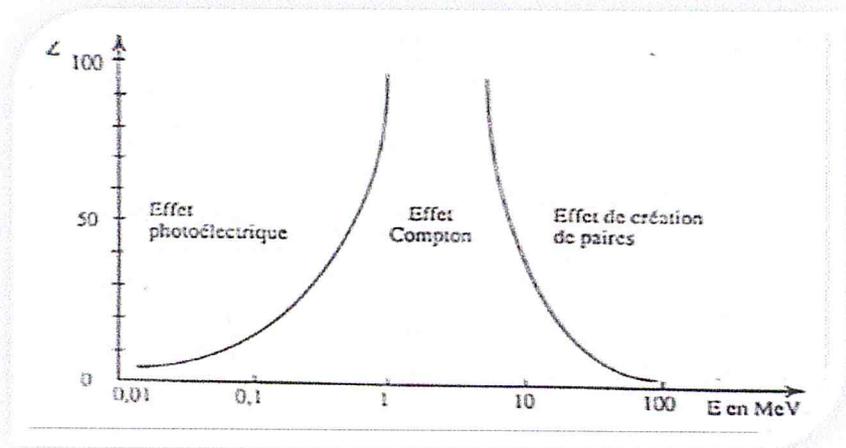


Figure IV.3 : Prédominance de l'interaction photon-matière

#### IV.1.4.3 La chaîne de spectrométrie gamma

La chaîne de spectrométrie gamma 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. Elle comporte les composants suivants (voir figure IV.4) [24] :

- Un détecteur dans un château de plomb,
- Une haute tension,
- Un préamplificateur,
- Un amplificateur,
- Un analyseur multicanaux,
- Un ordinateur avec un logiciel de traitement des données.

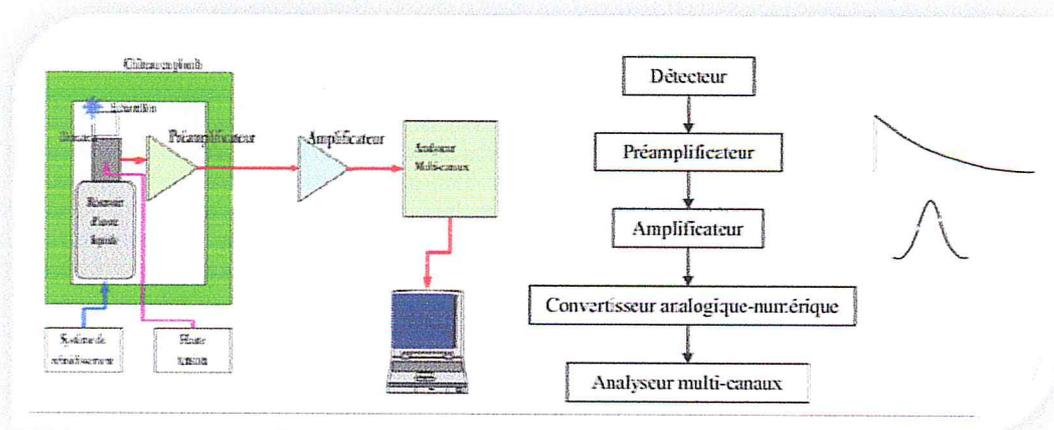


Figure IV.4 : Chaîne de spectrométrie gamma

## **Le détecteur**

Il est constitué d'un cristal en germanium, d'une structure en plomb permettant d'atténuer le bruit extérieur (rayonnement cosmique...), d'une structure en cuivre et d'un cryostat permettant de baisser la température du cristal et donc son agitation thermique ce qui limite le bruit et stabilise le cristal.

Le détecteur le plus couramment utilisé en spectrométrie gamma est le semi-conducteur de germanium car il possède la bande interdite la plus étroite et permet de créer le plus grand nombre de porteurs de charge pour un dépôt d'énergie donné. Par ailleurs, seul le germanium peut être utilisé avec des volumes importants, sa haute densité et son numéro atomique élevé en font le semi-conducteur le plus approprié pour la détection des rayonnements ionisants gamma.

Pour fonctionner, le détecteur doit être polarisé par une alimentation haute tension. Il subit directement l'ionisation des rayonnements incidents en mettant en mouvement des paires d'électron-trou. Ces paires de charges sont, en fonction de leurs signes, attirées aux bornes du milieu détecteur polarisé par l'alimentation électrique, un courant électrique (sous forme d'impulsions) prend donc naissance. Ce signal, issu du détecteur, est par la suite mis en forme par un préamplificateur pour devenir exploitable dans l'ensemble de la chaîne de mesure qui se compose d'un amplificateur suivi d'un système d'analyse en amplitude des impulsions.

## **Haute tension**

Elle est réglée sur une différence de potentiel consignée par le fournisseur du détecteur.

## **Préamplificateur**

Il est placé à proximité du cristal de germanium, il permet d'obtenir le couplage optimal de l'impulsion avec le détecteur.

## **Amplificateur**

Il exploite les impulsions sortant du préamplificateur, il adapte tout d'abord l'amplitude du signal incident à une gamme de tension exploitable par l'étage suivant, ensuite il réalise une mise en forme, le plus souvent gaussienne.

## **Analyseur multicanaux (MCA)**

Il permet enfin de trier les impulsions en fonction de leur amplitude. Il est doté de mémoires permettant de stocker ces données dans des canaux correspondant à des intervalles de tension et de transmettre en ligne vers un ordinateur.

## **Convertisseur analogique-numérique (ADC)**

Il convertit le signal électrique envoyé par l'amplificateur en un système de codage numérique, traité ensuite par un analyseur multicanaux.

## IV.2 Préparation des échantillons

La préparation des échantillons à mesurer commence par le conditionnement des échantillons dans des fioles de telle sorte qu'ils soient plus homogènes et aussi sec que possible d'une part et semblable au standard servant à la calibration du détecteur. Cette préparation a été réalisée au laboratoire des déchets du CRNA. Les minerais de phosphate ont été mis dans des boîtes codifiées au laboratoire (Figure IV.5).



**Figure IV.5 : Les échantillons à préparer**

Nous disposons de quatorze (14) échantillons, leur préparation a suivi les étapes suivantes :

1. Remplir des fioles d'un volume de 20 cc et entasser les échantillons lors du remplissage. (Figure IV.6)
2. Peser les échantillons et noter leurs masses (Figure IV.6)
3. Fermer hermétiquement les fioles afin d'empêcher tout échappement de gaz radon (Figure IV.6)

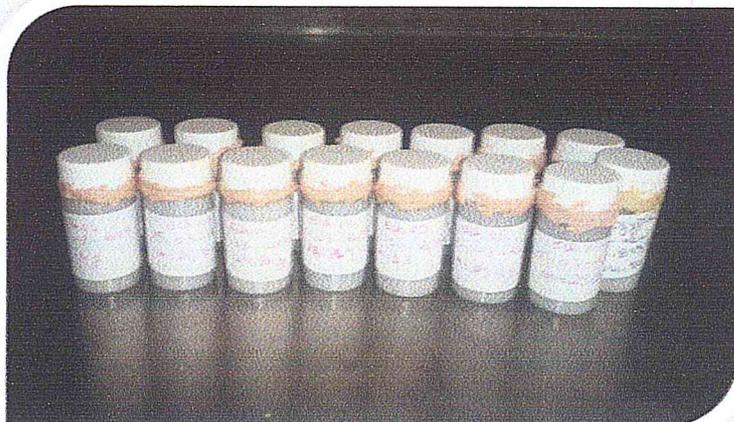


Figure IV.6: Conditionnement des échantillons

4. Codifier ces échantillons (tableau IV.1).
5. Les fioles scellés et étiquetés sont entreposés pour une période suffisante (environ 3 semaines) afin d'atteindre l'**équilibre séculaire** entre le radon et ses descendants.

Tableau IV.1 : Codification des échantillons et les masses correspondantes

Codification	L'échantillon	La masse (g)
91-DEP-BLED ELHADBA -63/65-	Ech 01	24.76
91-DEP-DJEMIDJ -63/65-	Ech02	24.92
30-TV-BLED ELHADBA -CT-	Ech03	23.86
91-DEP-KEFESN-NOIR -66/68-	Ech04	24.81
30-TV-KEFS-BEIGE	Ech05	23.00
30-TV-KEFESN-NOIR	Ech06	23.16
91-DEP-KEFS-BEIGE -66/68-	Ech07	25.20
34-DEB-S-DJEMIDJ -66/68-	Ech08	25.31
30-TV-DJEMIDJ-	Ech09	24.37
34-DEB-S-KEFES-BEIGE -63/65-	Ech10	25.39
34-DEB-S-KEFESN-NOIR -63/65-	Ech11	26.32
KEF SNOUN (sachet)	Ech12	35.69
BLED ELHADBA gisement (sachet)	Ech13	33.86
Ech 3 phosphate tout venant (sachet)	Ech14	24.73

### IV.2.1 Équilibre séculaire

Lorsque la période radioactive du père est très nettement supérieure à celle des fils, les activités des différents fils se mettent à l'équilibre avec celle du père. Cet équilibre, dit séculaire, est obtenu après un temps égal à environ 10 fois la période du fils dont la période est la plus longue (Figure IV.7) [25].

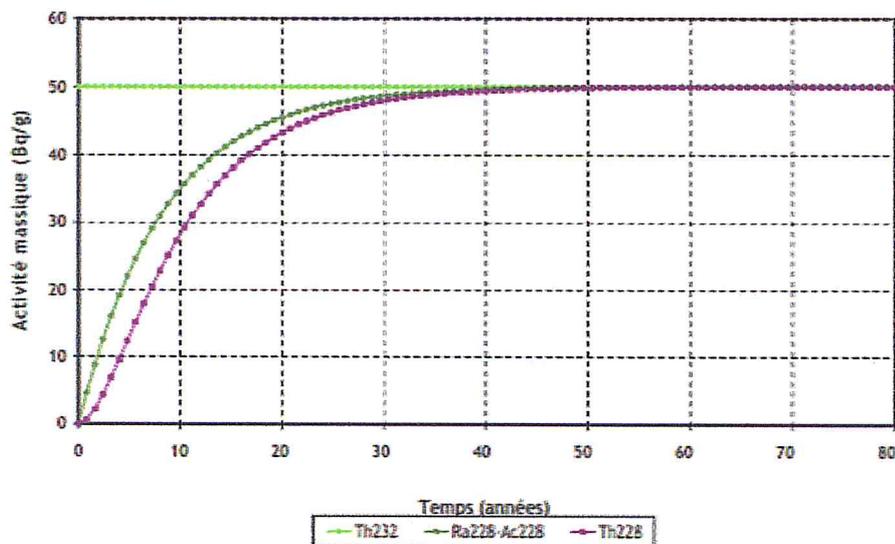


Figure IV.7 : L'équilibre séculaire dans le cas de la chaîne de filiation du  $^{232}\text{Th}$

## IV.2.2 La préparation de l'acide phosphorique et le phosphogypse

La transformation des matières premières contenant naturellement des radionucléides conduit à la génération de grandes quantités de phosphogypse (la fabrication d'une tonne d'acide phosphorique a comme sous-produit fatal 5 tonnes de phosphogypses) [13]. Qui représente un déchet radioactif. Afin d'évaluer l'impact radiologique lié à l'industrie de phosphate, une synthèse de l'acide phosphorique a été faite au niveau du laboratoire des déchets radioactifs du CRNA.

### IV.2.2.1 Synthèse de l'acide phosphorique

Le procédé utilisé pour produire de l'acide phosphorique à partir du minerai de phosphate est le procédé par voie humide, en utilisant un protocole basé sur l'attaque du minerai par l'acide sulfurique suivant la production à l'échelle industrielle [26].

Le minerai de phosphate utilisé pour cette synthèse est le minerai le plus radioactif. Le protocole de production comprend les étapes suivantes :

Préparer le matériel et les produits nécessaires. (Figure IV.8)

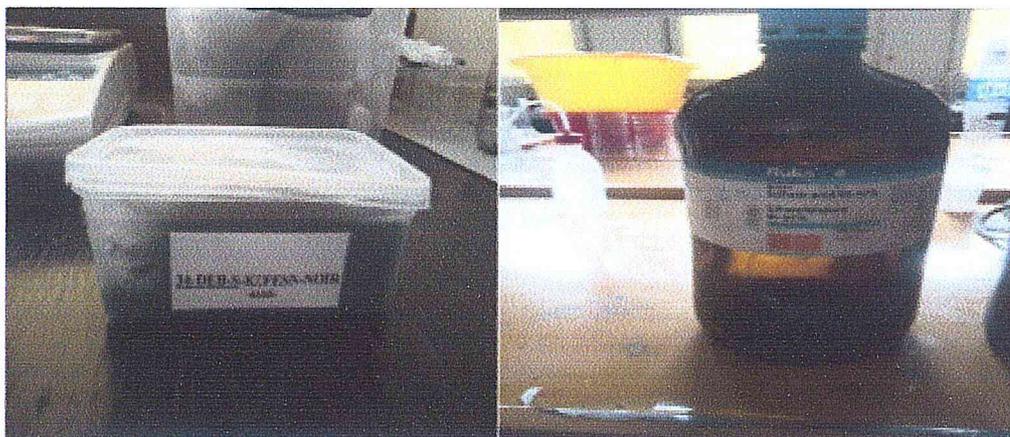


Figure IV.8 : Produits utilisés

### Étape 01

Rincer le matériel (éprouvette, bécher ...) par de l'eau distillée pour éviter toute contamination.

### Étape 02

Tamiser le minerai dans le but de prendre une masse de 15.01 g de la fraction fine (Figure IV.9).

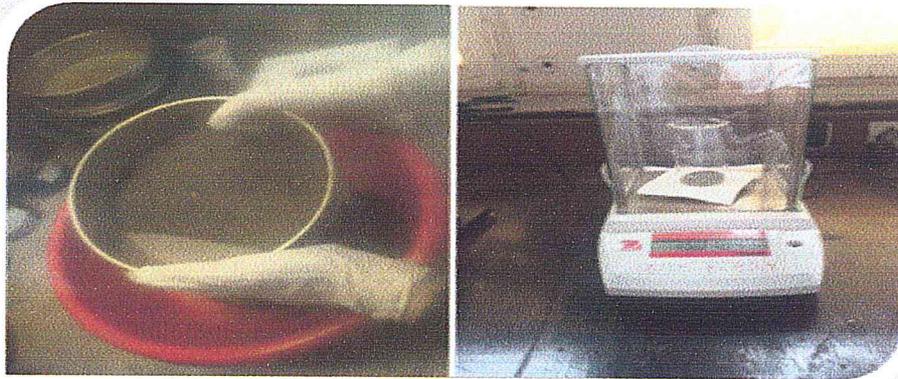


Figure IV.9 : Tamisage et pesage

### Étape 03

Mélanger les acides dans un bécher.

#### Description de la synthèse de l'acide phosphorique

Sur un agitateur, on prépare un mélange de 6.5 ml d'acide sulfurique avec 0.32 ml d'acide phosphorique dans un bécher de 500 ml à une température de 80°C. On ajoute à ce mélange 19 ml d'eau distillée. Sous agitation, on ajoute le minerai et après chaque 15 min on ajoute deux fois le volume du mélange de départ (voir Figure IV.10).

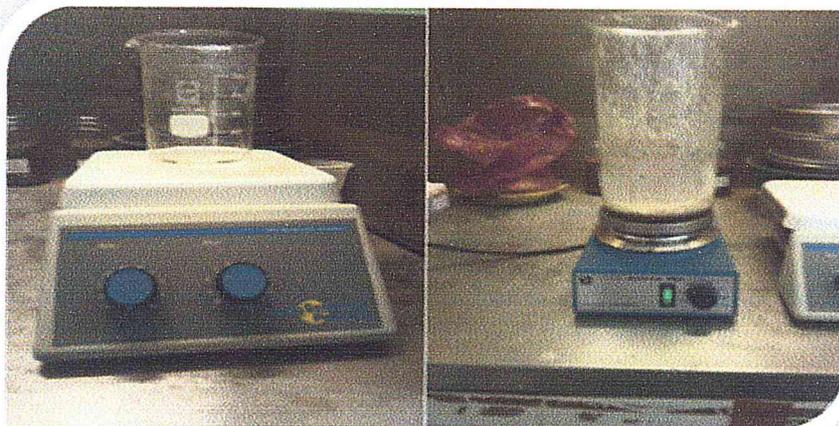
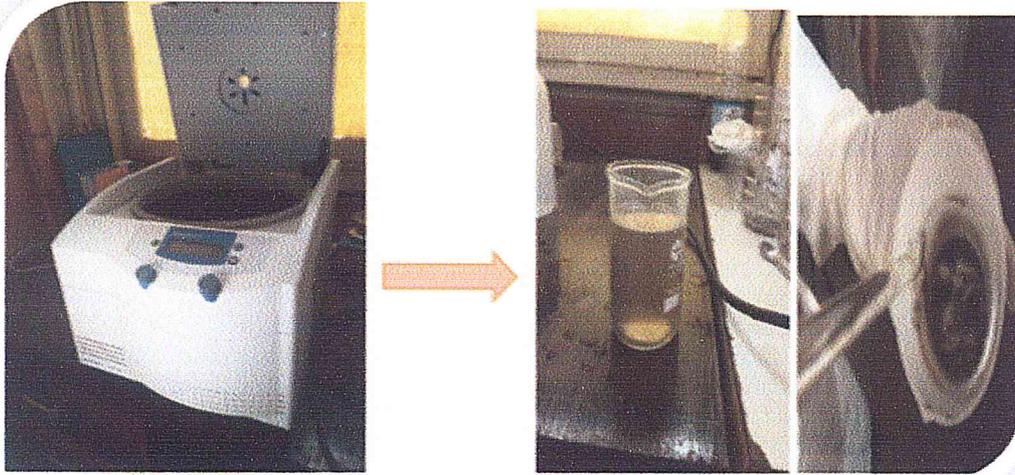


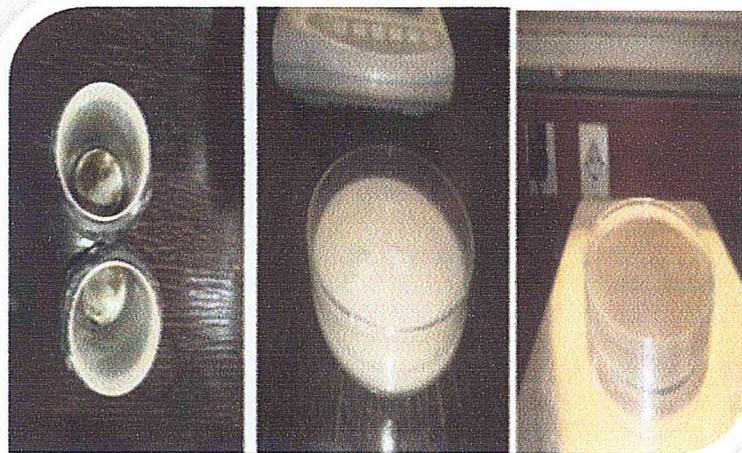
Figure IV.10 : Protocole de synthèse

À la Fin, on obtient deux phases, liquide et solide, séparées par centrifugation. Le surnageant obtenu est de l'acide phosphorique tandis que le précipité est du phosphogypse (Figure IV.11).



**Figure IV 11 : L'acide phosphorique et le phosphogypse**

Dans la phase solide (phosphogypse), nous avons remarqué la présence de deux couches, une blanche et l'autre grise. On répète l'opération de rinçage et de centrifugation afin de séparer les couches (Figure IV.12).



**Figure IV.12 : Les couches de phosphogypse**

Ces deux couches de phosphogypse ont été séchées à une température de 80°C (Figures IV.13). Le séchage pour l'obtention d'une masse constante a duré trois jours. On notait, chaque jour les masses des deux couches, la courbe de séchage est représentée par la figure IV.14. Les échantillons ont été conditionnés dans des fioles qui sont scellées et entreposées pour atteindre l'équilibre séculaire.



Figure IV.13 : Séchage de phosphogypse dans une étuve

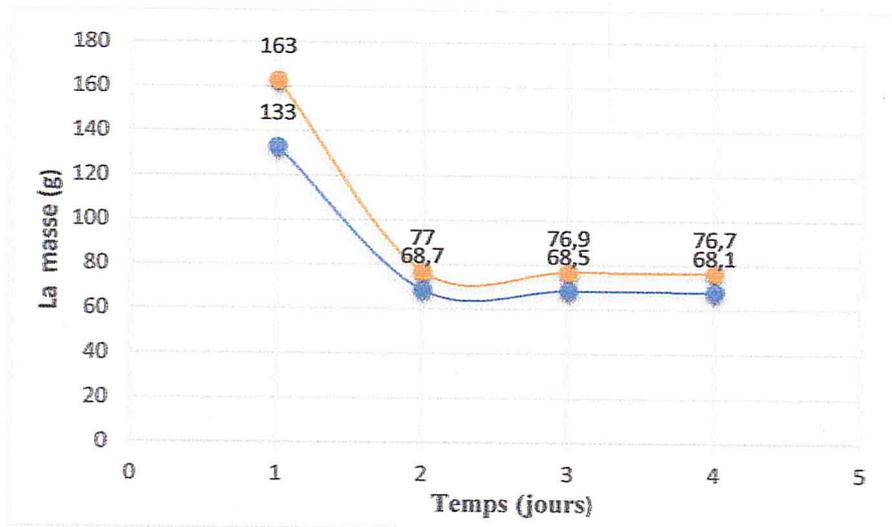
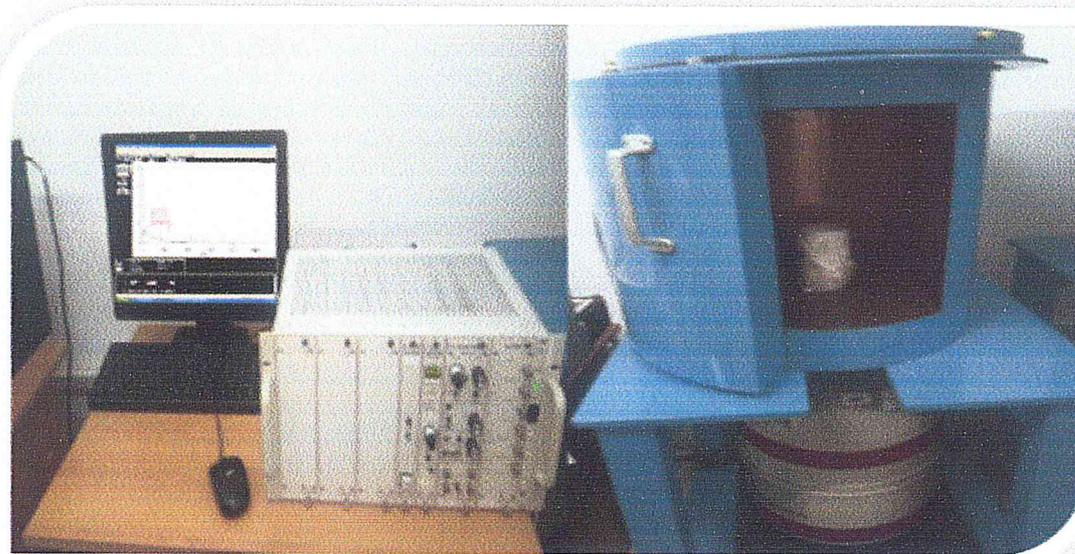


Figure IV.14 : Courbe de séchage de phosphogypse

### IV.3 Système de mesure

L'analyse des échantillons a été effectuée en utilisant une chaîne de détection de marque CANBERRA (Figure IV.15). Celle-ci comprend un détecteur en germanium Ge(HP) de type coaxial polarisé à +3500 V. Il est logé dans une enceinte blindée, pour limiter le taux de comptage du bruit de fond, et il est refroidi par de l'azote liquide contenu dans un Dewar. Un amplificateur et un analyseur multicanal relié à un ordinateur permettent le traitement et la mise en forme. Les analyses de spectres gamma ont été effectuées à l'aide du logiciel de dépouillement (Génie 2000).



**Figure IV.15 : Chaîne de spectrométrie gamma**

### **Logiciel de traitement et d'analyse du signal**

Le système d'acquisition de spectrométrie gamma au niveau du laboratoire des déchets du CRNA est géré par un logiciel informatique appelé Génie 2000 qui assure les fonctions suivantes :

- La gestion des acquisitions
- La mesure des paramètres de la chaîne
- La localisation des pics d'absorption totale
- Le calcul des énergies et de la surface de chaque pic
- La prise en compte de facteurs correctifs spécifiques à une mesure donnée (décroissance durant le temps de comptage, correction d'auto-atténuation, correction de sommation).

### **IV.3.1 Étalonnage de la chaîne**

#### **IV.3.1.1 Étalonnage en énergie**

La première étape devant être obligatoirement réalisée avant de procéder à la mesure consiste à réaliser la calibration en énergie de la chaîne de spectrométrie gamma pour identifier de manière précise tous les éléments radioactifs présents dans l'échantillon analysé (analyse qualitative). Cette calibration consiste à faire correspondre, à chaque canal de l'analyseur multicanaux, une énergie donnée afin d'avoir une relation entre l'énergie et le numéro du canal. On pourra par la suite déterminer l'énergie en fonction du numéro du canal.

Dans notre travail, on a utilisé un standard liquide contenant 15 ml de source mixte (multi gamma) certifiée et un autre standard sol préparé par couches en ajoutant le même volume de source mix à l'aide d'une micro pipette à chaque couche, afin d'avoir une répartition homogène. Un volume de 6 ml a été nécessaire pour la préparation de ce standard.

L'étalonnage en énergie du détecteur est effectué à l'aide de standard sol préparé. Le menu 'étalonnage' figurant dans la fenêtre d'accueil propose plusieurs modes d'étalonnage en énergie. Dans notre cas, le mode d'étalonnage à partir de la bibliothèque incorporée a été choisi. La méthode du curseur a été utilisée, elle permet de sélectionner les radionucléides des sources étalons afin de récupérer les énergies de leurs raies.

Pour pouvoir utiliser cette méthode du curseur, il est nécessaire qu'un spectre soit présent dans la fenêtre principale et que le curseur soit positionné sur le sommet du pic désiré. En cliquant sur le bouton curseur, le numéro du canal correspondant à la position du curseur est automatiquement mis à jour dans le champ « canal ». Ensuite, la courbe d'étalonnage sera affichée pour que le programme puisse faire la recherche automatique des pics et déterminer les radioéléments (Figure IV.16).

L'étalonnage en énergie de détecteur est effectué aussi à l'aide de standard sol préparé. Le tracé de la courbe d'étalonnage a été fait manuellement en utilisant l'Excel (Figure IV.17).

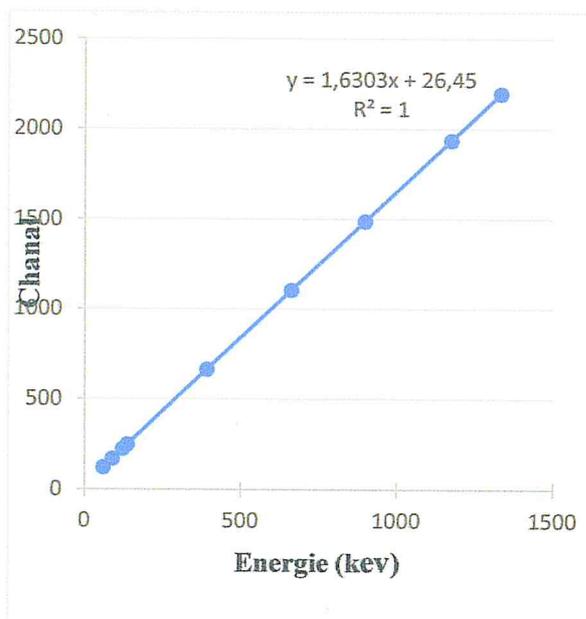


Figure IV.17: Courbe d'étalonnage en énergie par

a été fait manuellement

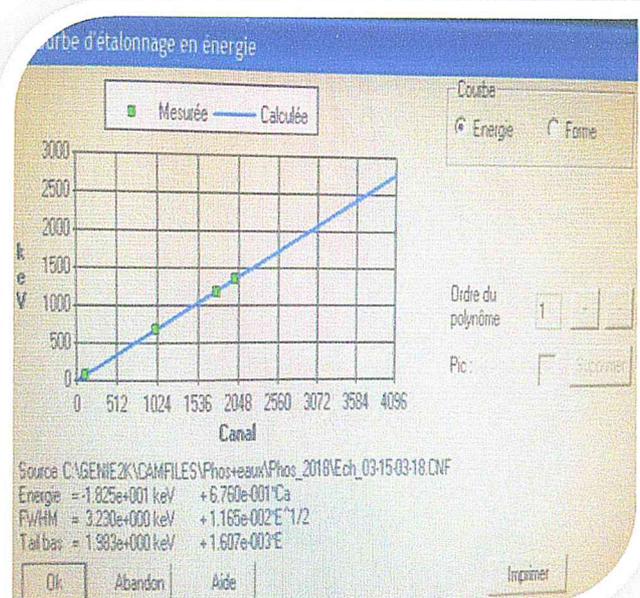


Figure IV.16: Courbe d'étalonnage fournie

le logiciel

### IV.3.1.2 Étalonnage en efficacité

Le nombre de photons émis par une source n'est pas détecté en totalité, le résultat brut donné par la mesure doit donc être corrigé par l'efficacité de comptage, pour obtenir l'activité réelle. En effet, la surface du détecteur ne détecte pas l'intégralité du rayonnement émis, mais uniquement les photons gamma émis dans l'angle solide défini par la source.

L'efficacité de comptage est définie comme le rapport entre le nombre de photons mesurés dans un spectre et le nombre de photons émis par l'échantillon.

La détermination de l'activité contenue dans notre échantillon nécessite la connaissance de ce rendement qui dépend de la configuration de la source, de la géométrie de comptage et de l'énergie du rayonnement. La précision des résultats de mesure de l'activité d'un radioélément présent dans l'échantillon est essentiellement basée sur la méthodologie suivie lors de la calibration en efficacité.

Pour déterminer l'efficacité de détection d'un échantillon, on doit disposer d'une source standard ayant les mêmes caractéristiques que l'échantillon à mesurer (densité, volume), en se plaçant dans les mêmes conditions de mesure.

L'efficacité est obtenue par la relation suivante :

$$\varepsilon = \frac{N_{réel}}{A.t.I.m(v)} \dots \dots \dots \text{IV.6}$$

$\varepsilon$  : Efficacité

$N_{réel} = N_{net} - N_{bf}$  : Surface d'un pic de l'élément considéré

A : Activité

t : temps de comptage

I : Intensité du pic

m (v) : masse de l'étalon (g) ou bien le volume (m<sup>3</sup>)

#### Courbe d'efficacité

##### Standard du sol

Après comptage de standard, et analyse du spectre obtenu, la courbe d'efficacité a été tracée (Figure IV.18).

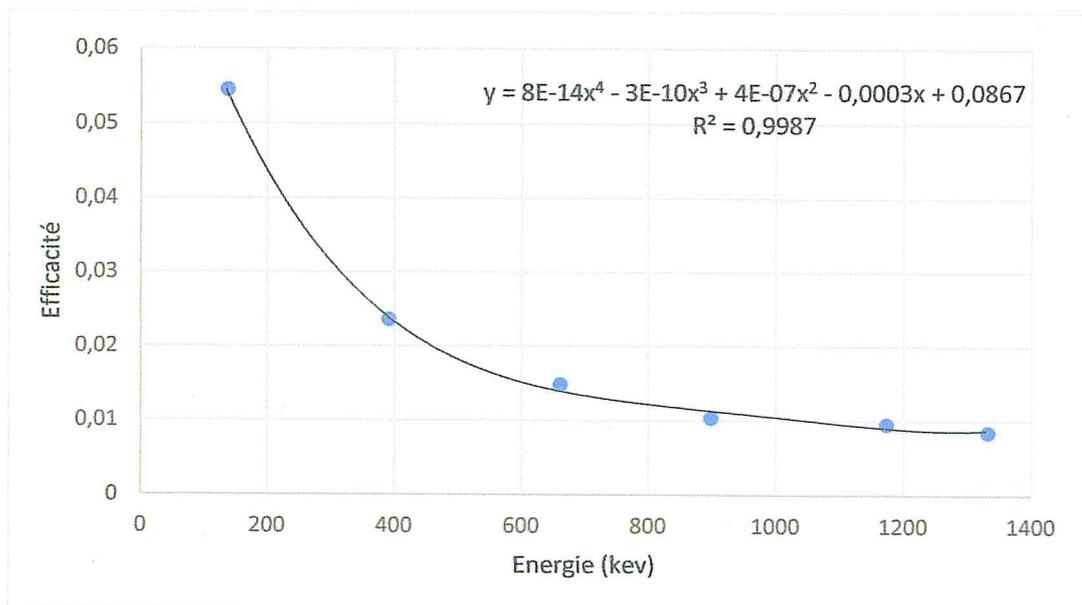


Figure IV.18: Courbe d'efficacité du standard de sol

À partir de l'équation de cette courbe, on peut calculer les efficacités des radioéléments d'intérêts.



### Standard liquide

De la même façon que pour le standard de sol, on effectue le comptage du standard, et après analyse du spectre obtenu, on trace la courbe d'efficacité (Figure IV.19).

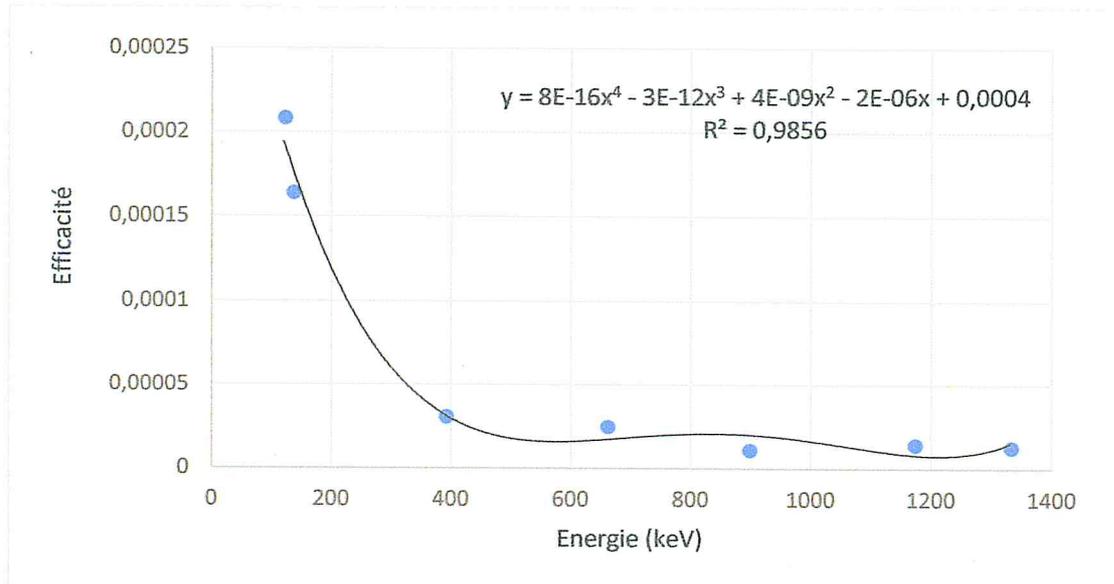


Figure IV.19: Courbe d'efficacité du standard liquide

### IV.3.2 Bruit de fond

Pour améliorer la justesse des résultats de mesure de l'activité, il faut tout d'abord connaître le bruit de fond qui devra être soustrait. On obtient le spectre du bruit de fond en laissant le détecteur seul ou en mettant un échantillon ne contenant que de l'eau pure dans le compartiment de mesure de la chaîne gamma.

La radioactivité tellurique présente dans les matériaux qui nous entourent, et le rayonnement cosmique auquel est soumise l'atmosphère, sont les principales causes du bruit de fond enregistré [27].

Dans notre cas, on a lancé une mesure de bruit de fond à vide pendant 64800 s et on a obtenu le spectre de la Figure IV.20.

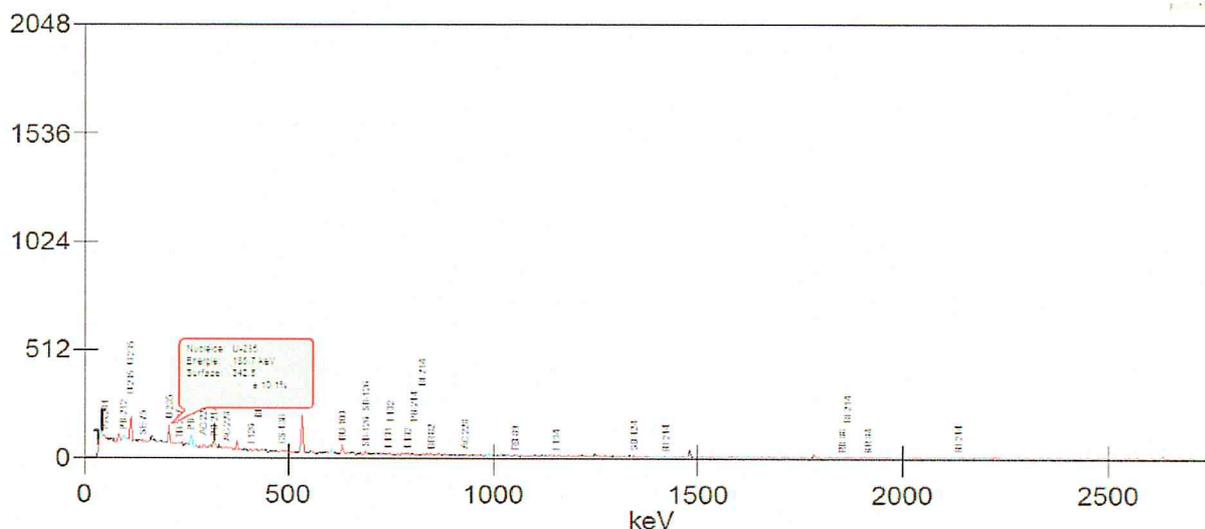


Figure IV.20: Spectre du bruit de fond

### IV.3.3 Activité Minimale Détectable (AMD)

Dans le cas de la recherche de très faibles activités, la mesure d'un échantillon peut donner un résultat très proche de celui obtenu lors de la détermination du bruit de fond de l'installation de mesure.

L'AMD est la plus petite valeur d'activité détectable lors de la mesure, elle dépend du temps accordé à cette mesure ainsi que du bruit de fond de l'installation de comptage.

Pour se prononcer, l'analyste fait appel aux notions de **seuil de décision** et de **limite de détection**.

En raison des fluctuations statistiques du bruit de fond, il est possible de détecter un faux pic, c'est-à-dire un pic dû au bruit de fond. Cette erreur est quantifiée par le risque  $\alpha$  qui donne la probabilité pour qu'un radionucléide soit détecté alors qu'il est absent de l'échantillon. Le **seuil de décision** est alors la surface de pic au-dessus de laquelle le **risque  $\alpha$**  est inférieur à une valeur donnée.

D'un autre côté, il est possible de ne pas détecter un vrai pic c'est-à-dire un pic dû à une activité présente dans l'échantillon et non pas dû au bruit de fond. Cette erreur est quantifiée par le risque  $\beta$  qui donne la probabilité pour qu'un radionucléide ne soit pas détecté alors qu'il existe dans l'échantillon. La **limite de détection** correspond alors à l'activité pour laquelle la probabilité que la surface de pic ne soit pas supérieure au seuil de décision (cas de non-détection) est donnée par le **risque  $\beta$**  [27].

#### IV.3.4 Analyse des échantillons

Après avoir effectué le calibrage de la chaîne et avoir atteint l'équilibre séculaire, les échantillons sont prêts pour être analysés. On dépose l'échantillon dans le compartiment de mesure de la chaîne et on lance l'acquisition. Après un temps suffisant, on arrête l'acquisition et on enregistre les spectres.

Les radioéléments d'intérêt proviennent des trois chaînes naturelles ( $U^{238}$ ,  $Th^{232}$  et  $U^{235}$ ).

Les spectres obtenus affichent l'intensité des rayonnements gamma en fonction des énergies. Pour illustrer cela, on a pris les exemples des figures IV.21, 22, et 23.

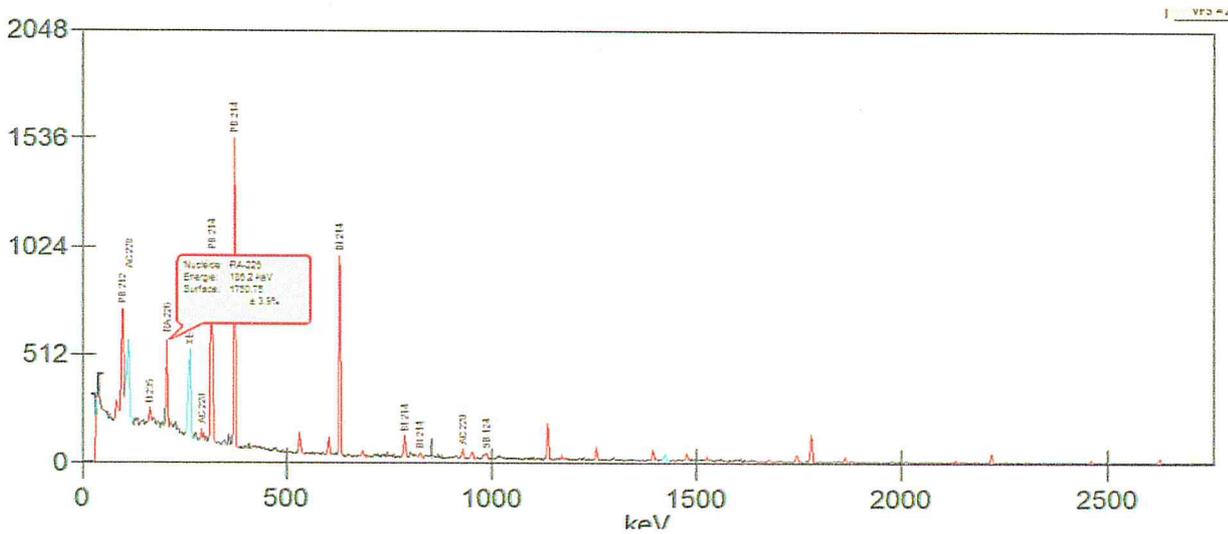


Figure IV.21 : Spectre d'un échantillon de minerai

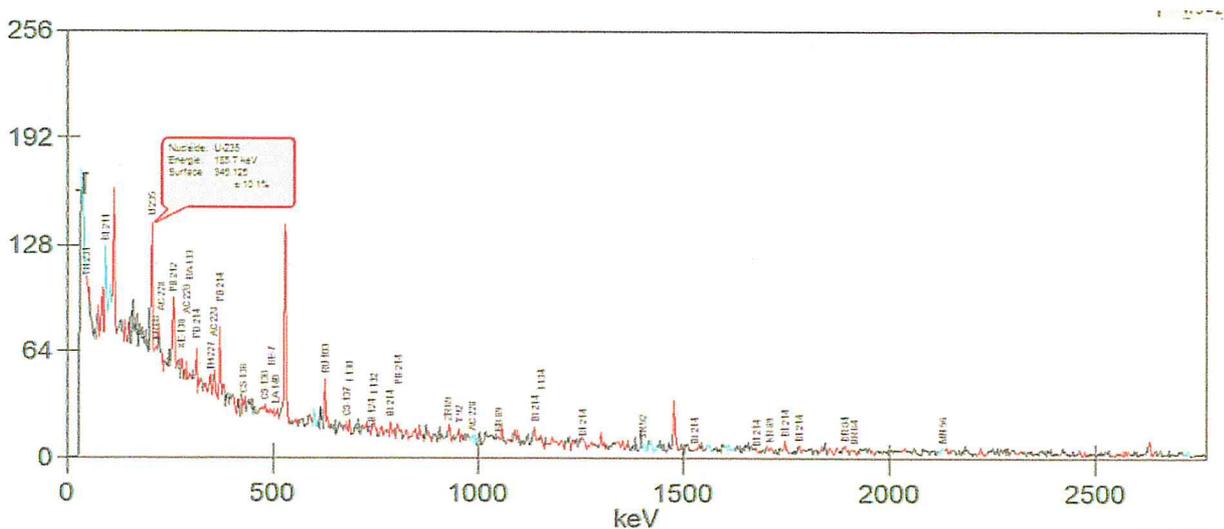
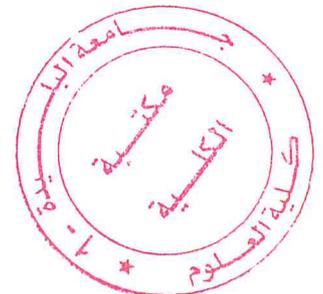


Figure IV.22 : Spectre de l'acide phosphorique



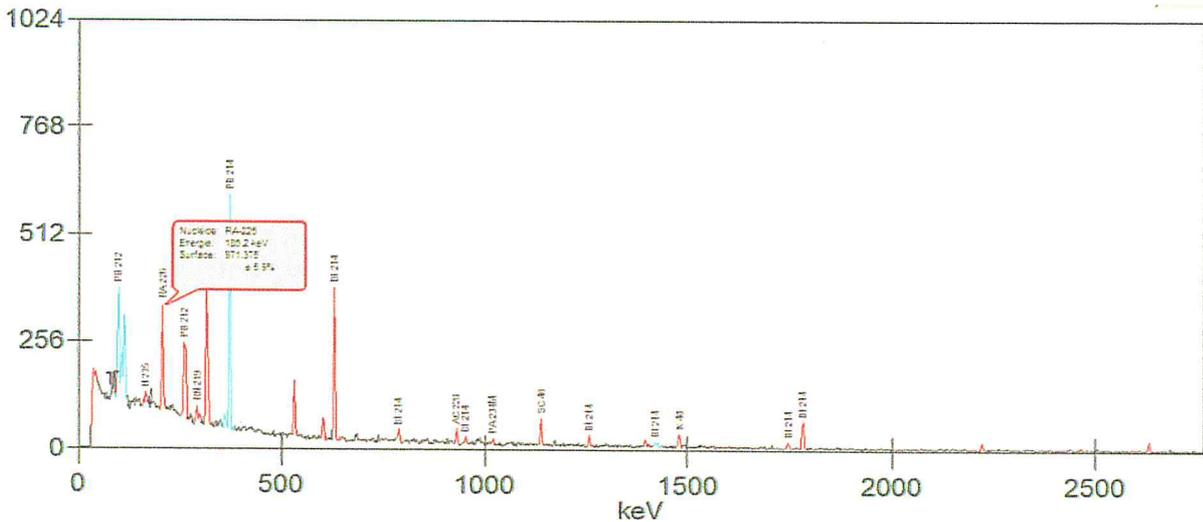


Figure IV.23 : Spectre d'un échantillon de phosphogypse

#### IV.3.4.1 Calcul de l'activité

Tout d'abord, on commence par la détermination de l'AMD. Pour chaque radionucléide, on utilise la formule de Curie. On prend par exemple le  $^{214}\text{Bi}$  :

$$AMD = \frac{2.71 + 4.65 \sqrt{N_{Bf}}}{m.t.I.\varepsilon} = \frac{2.71 + 4.65 \sqrt{200}}{24.76 \cdot 0.45 \cdot 0.015 \cdot 64800} = 0.0063 \text{ Bq/g} \dots \text{IV.7}$$

L'activité spécifique est déterminée à partir la relation suivante :

$$A = \frac{N_{\text{réel}}}{m.t.I.\varepsilon} \dots \text{IV.8}$$

Où

$N_{\text{réel}} = N_{\text{net}} - N_b$  : Surface d'un pic de l'élément considéré

m : masse de l'échantillon

t : temps de comptage de l'échantillon

$\varepsilon$  : Efficacité

I : Intensité du pic

A : Activité

L'erreur sur l'activité spécifique est déterminée en appliquant la fonction de la déviation standard ( $\pm 2\sigma$ ), où  $\sigma$  est [28]:

$$\sigma = \sqrt{\frac{N_e}{T_e^2} + \frac{N_B}{T_B^2}} \dots\dots\dots \text{IV.9}$$

Où

$N_e$  : nombre de coups de l'échantillon.

$N_B$  : nombre de coups du bruit de fond.

$T_e$  : temps de comptage de l'échantillon.

$T_B$  : temps de comptage du bruit de fond.

On prend par exemple ( $^{214}\text{Pb}$ ) et on mesure l'activité, l'erreur sur l'activité :

$$= \frac{N_{\text{réel}}}{\varepsilon.t.I.m} = \frac{9625.25}{0.03.61200.0.024.24.76} ; A = 0.75619 \text{ Bq/g} \dots\dots\dots \text{IV.10}$$

$$\Delta A = 2\sigma = 2 \times \sqrt{\frac{9625}{(61200)^2} + \frac{168}{(64800)^2}} = 3.230 \text{ B Bq/kg} \dots\dots\dots \text{IV.11}$$

#### IV.3.4.2 Calcul des concentrations des radionucléides par spectrométrie gamma

Les radionucléides émetteurs de rayons gamma, en particulier ceux enregistrés, étaient les suivants :  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  et  $^{40}\text{K}$ . Les radionucléides naturels importants pour ce travail sont principalement les noyaux émettant des rayons gamma dans la série de désintégration de l' $^{238}\text{U}$  et le  $^{232}\text{Th}$ , et le  $^{40}\text{K}$ . Ce dernier peut être mesuré directement grâce aux rayons gamma qu'il émet lui-même, mais l' $^{238}\text{U}$  et le  $^{232}\text{Th}$  n'émettent pas eux-mêmes des rayons gamma. Ces deux derniers sont éventuellement mesurés par les rayons gamma provenant de leurs produits de désintégration.

C'est ainsi que les produits de décroissance pour l' $^{238}\text{U}$  à savoir  $^{214}\text{Pb}$  (295 et 352 keV), et  $^{214}\text{Bi}$  (609 keV) et pour le  $^{232}\text{Th}$ , nous avons  $^{228}\text{Ac}$  (209, 338 et 911 keV),  $^{212}\text{Pb}$  (239 keV),  $^{212}\text{Bi}$  (727 keV), et  $^{208}\text{Tl}$  (583 keV). Ces produits ont été utilisés pour les mesures de leurs parents [29].

#### IV.3.4.3 Calcul des activités du $^{226}\text{Ra}$ et de l' $^{235}\text{U}$

Le  $^{226}\text{Ra}$  est un émetteur gamma avec sa raie gamma principale à 186,1 keV. Bien que la probabilité d'émission soit assez faible (3.516%), cette raie serait, dans de nombreux cas, suffisante pour mesurer l'activité directement, tout en sachant que l' $^{235}\text{U}$  dispose également d'une raie de gamma à 185,7 keV avec une probabilité d'émission de 57,25%. En général, on peut s'attendre à la fois que les deux radioéléments  $^{226}\text{Ra}$  et  $^{235}\text{U}$  soient présents dans les échantillons environnementaux, de sorte que ces lignes ne peuvent pas d'emblée être utilisées pour des mesures absolues.

Afin de mesurer le  $^{226}\text{Ra}$  d'une manière plus appropriée, on doit se tourner vers ses descendants tels que le  $^{222}\text{Rn}$  qui est un gaz très mobile avec une demi-vie de 3,8235 jours. Sauf que lors de la préparation de l'échantillon, il est inévitable que certaines quantités de  $^{222}\text{Rn}$ , soient perdues, ce qui signifie que tout l'équilibre séculaire est rompu. Pour remédier à cela et donner le temps pour le rétablissement de l'équilibre séculaire, les échantillons sont laissés pendant environ quatre semaines avant que les mesures ne soient effectuées. Ceci est important parce que les descendants du radon fournissent la meilleure façon de mesurer avec précision l'activité de  $^{226}\text{Ra}$  dans un échantillon. [30].

L'activité du Ra est déterminée à partir de la moyenne de l'activité de leurs descendants à savoir le Pb et le Bi.

$$A_{\text{Ra}} = \frac{A_{\text{Pb}} + A_{\text{Bi}}}{2} \dots\dots\dots\text{IV.11}$$

L'activité de l'U est déterminée à partir de la relation suivante :

$$A_{\text{U}} = A_{\text{pic}} - A_{\text{Ra}} \dots\dots\dots\text{IV.12}$$

On prend l'exemple de l'échantillon 01 :

$$A_{\text{Ra}} = \frac{0.75619 + 0.644618}{2} = 0.700404 \text{ Bq/g} \dots\dots\dots\text{IV.13}$$

$$A_{\text{U}} = 1.642346 - 0.700404 = 0.941942 \text{ Bq/g} \dots\dots\dots\text{IV.14.}$$

Après dépouillement des spectres, on obtient les résultats d'analyse des échantillons qui sont rassemblés dans les tableaux IV.2, 3, et 4.

**Tableau IV.2 : Efficacités des radionucléides présents dans les échantillons**

Radionucléides	Energie (keV)	Efficacité calculé	Incertitude	Efficacité mesuré	Intensité
$^{226}\text{Ra}$	186	0.045	0.001312	0.043	0.03
$^{214}\text{Pb}$	351	0.026	0.000657	0.024	0.35
$^{214}\text{Bi}$	609	0.015	0.000177	0.015	0.45
$^{228}\text{Ac}$	911	0.011	0.0001	0.011	0.26
$^{40}\text{K}$	1460	0.008	0.000107	0.078	0.035

**Tableau IV.3 : Concentrations des radionucléides présents dans les minerais analysés**

Échantillon	Radionucléides	Surface	Temps (s)	A <sub>calculée</sub> (Bq/kg)	A <sub>mesurée</sub> (Bq/kg)	ΔA (Bq/kg)
01	<sup>226</sup> Ra+ <sup>235</sup> U	3210.38±0.026	61200	1569.353±1.9	1552.10±1.9	0.017246
	<sup>214</sup> Pb	9625.25±0.011	61200	698.021±3.2	672.168±3.2	0.025853
	<sup>214</sup> Bi	6593.38±0.013	61200	644.618±2.6	644.618±2.6	0
	<sup>228</sup> Ac	419.375±0.070	61200	96.769±0.6	96.769±0.6	0
	<sup>40</sup> K	181±0.119	61200	149.3092±0.5	153.138±0.5	0.00383
	<sup>235</sup> U	/	/	767.14	941.942	174.802
	<sup>226</sup> Ra	/	/	670.041	700.404	30.363
02	<sup>226</sup> Ra+ <sup>235</sup> U	902±0.056	18000	489.54±325.6	558.821±325.6	0.06928
	<sup>214</sup> Pb	3025±0.024	18000	741.077±130.9	802.834±130.9	0.06176
	<sup>214</sup> Bi	1842±0.0265	18000	608.367±185.3	608.367±185.3	0
	<sup>228</sup> Ac	112.375±0.144	18000	87.596±1.1	87.596±1.1	0
	<sup>40</sup> K	75.375±0.153	18000	210.047±786.3	215.433±786.3	0.00539
	<sup>235</sup> U	/	/	814.818	853.221	0.85322
	<sup>226</sup> Ra	/	/	674.722	705.6	0.7056
03	<sup>226</sup> Ra+ <sup>235</sup> U	2487±0.03	54000	429.808±1.9	496.31±1.9	0.0665
	<sup>214</sup> Pb	7602±0.01	54000	648.369±3.2	702.4±3.2	0.05403
	<sup>214</sup> Bi	5018±0.01	54000	576.983±2.6	576.98±2.6	0
	<sup>228</sup> Ac	373±0.07	54000	101.223±0.4	101.22±0.4	0
	<sup>40</sup> K	164±0.13	54000	159.107±0.8	163.18±0.8	0.00408
	<sup>235</sup> U	/	/	817.133	856.62	0.85662
	<sup>226</sup> Ra	/	/	612.676	639.69	0.63969
04	<sup>226</sup> Ra+ <sup>235</sup> U	451±0.08	8139.6	1654.405±5.2	1731.354±5.2	0.07695
	<sup>214</sup> Pb	1267±0.03	8139.6	689.5±8.7	746.958±8.7	0.05746
	<sup>214</sup> Bi	869±0.03	8139.6	637.551±7.2	637.551±7.2	0
	<sup>228</sup> Ac	50±0.21	8139.6	86.577±1.7	86.577±1.7	0
	<sup>40</sup> K	33±0.23	8139.6	204.279±1.4	209.517±1.4	0.00524
	<sup>235</sup> U	/	/	990.879	1039.099	1.0391
	<sup>226</sup> Ra	/	/	663.525	692.255	0.69226
05	<sup>226</sup> Ra+ <sup>235</sup> U	1057±0.05	21065.79	1615.979±3.1	1691.141±3.1	0.07516
	<sup>214</sup> Pb	3322±0.02	21065.79	753.447±5.4	816.234±5.4	0.06279
	<sup>214</sup> Bi	2364±0.02	21065.79	722.833±4.6	722.833±4.6	0
	<sup>40</sup> K	142±0.16	21065.79	366.347±1.1	375.741±1.1	0.00939

	<sup>235</sup> U	/	/	877.839	921.607	<b>0.92161</b>
	<sup>226</sup> Ra	/	/	738.14	769.534	<b>0.76953</b>
<b>06</b>	<sup>226</sup> Ra+ <sup>235</sup> U	3084.5±0.02	61200	1611.985±1.8	1686.961±1.8	<b>0.07498</b>
	<sup>214</sup> Pb	9028.13±0.01	61200	699.949±3.1	758.278±3.1	<b>0.05833</b>
	<sup>214</sup> Bi	6181.75±0.01	61200	646.127±2.6	646.127±2.6	<b>0</b>
	<sup>228</sup> Ac	346±0.07	61200	85.353±0.6	85.353±0.6	<b>0</b>
	<sup>40</sup> K	239±0.08	61200	210.774±0.6	216.179±0.6	<b>0.00541</b>
	<sup>235</sup> U	/	/	938.9472	0.984759	<b>0.98476</b>
	<sup>226</sup> Ra	/	/	673.0379	0.702202	<b>0.7022</b>
<b>07</b>	<sup>226</sup> Ra+ <sup>235</sup> U	3585.13±0.02	61200	1721.945± 2.0	1802.03±2.0	<b>0.08009</b>
	<sup>214</sup> Pb	10561.4±0.01	61200	752.537± 3.3	815.24±3.3	<b>0.06271</b>
	<sup>214</sup> Bi	7102±0.01	61200	682.221±2.7	682.22±2.7	<b>0</b>
	<sup>228</sup> Ac	449±0.08	61200	101.795± 0.6	101.79±0.6	<b>0</b>
	<sup>40</sup> K	249±0.09	61200	201.817±0.6	206.99±0.6	<b>0.00518</b>
	<sup>235</sup> U	/	/	1004.565	1053.3	<b>48.735</b>
	<sup>226</sup> Ra	/	/	717.379	748.73	<b>0.74874</b>
<b>08</b>	<sup>226</sup> Ra+ <sup>235</sup> U	965±0.05	18000	1569.021± 3.4	1641.99± 3.4	<b>0.07298</b>
	<sup>214</sup> Pb	3020±0.02	18000	728.452± 6.1	789.156± 6.1	<b>0.0607</b>
	<sup>214</sup> Bi	1981±0.02	18000	644.193± 4.9	644.193± 4.9	<b>0</b>
	<sup>228</sup> Ac	119±0.14	18000	91.331± 1.2	91.331± 1.2	<b>0</b>
	<sup>40</sup> K	80±0.15	18000	219.5± 1.0	225.129± 1.0	<b>0.00563</b>
	<sup>235</sup> U	/	/	882.699	925.325	<b>0.92533</b>
	<sup>226</sup> Ra	/	/	686.323	716.675	<b>0.71668</b>
<b>09</b>	<sup>226</sup> Ra+ <sup>235</sup> U	895±0.05	20609	1320.009±2.9	1381.40±2.9	<b>0.0614</b>
	<sup>214</sup> Pb	2892±0.02	20609	632.768±5.2	685.499±5.2	<b>0.05273</b>
	<sup>214</sup> Bi	1930±0.02	20609	569.3±4.2	569.3±4.2	<b>0</b>
	<sup>228</sup> Ac	117±0.13	20609	81.453±1.0	81.453±1.0	<b>0</b>
	<sup>40</sup> K	94±0.14	20609	233.951±1.0	239.95±1.0	<b>0.006</b>
	<sup>235</sup> U	/	/	718.97	754.005	<b>0.75401</b>
	<sup>226</sup> Ra	/	/	601.034	627.399	<b>0.6274</b>
	<sup>226</sup> Ra+ <sup>235</sup> U	3038±0.02	57600	1538.753±1.989	1610.32±1.989	<b>0.07157</b>
	<sup>214</sup> Pb	9391±0.01	57600	705.643±3.3	764.447±3.3	<b>0.0588</b>
	<sup>214</sup> Bi	6345±0.01	57600	642.751±2.8	642.751±2.8	<b>0</b>
	<sup>228</sup> Ac	334±0.08	57600	79.854±0.634	79.854±0.634	<b>0</b>

<b>10</b>	<sup>40</sup> K	196±0.10	57600	167.525±0.6	171.821±0.6	<b>0.0043</b>
	<sup>235</sup> U	/	/	864.556	906.724	<b>0.90672</b>
	<sup>226</sup> Ra	/	/	674.197	703.599	<b>0.7036</b>
<b>11</b>	<sup>226</sup> Ra+ <sup>235</sup> U	1846±0.03	36000	1443.144±2.4	1510.26±2.4	<b>0.06712</b>
	<sup>214</sup> Pb	5688±0.01	36000	659.675±4.2	714.648±4.2	<b>0.05497</b>
	<sup>214</sup> Bi	3891±0.01	36000	608.372±3.4	608.372±3.4	<b>0</b>
	<sup>228</sup> Ac	180±0.13	36000	66.423±0.7	66.423±0.7	<b>0</b>
	<sup>40</sup> K	118±0.14	36000	155.67±0.7	159.661±0.7	<b>0.00399</b>
	<sup>235</sup> U	/	/	809.12	848.757	<b>0.84876</b>
	<sup>226</sup> Ra	/	/	634.023	661.51	<b>0.66151</b>
<b>12</b>	<sup>226</sup> Ra+ <sup>235</sup> U	1007±0.05	18525.08	1128.208±3.4	1180.68±3.4	<b>0.05247</b>
	<sup>214</sup> Pb	3131±0.01	18525.08	520.397±6.0	563.764±6.0	<b>0.04337</b>
	<sup>214</sup> Bi	2210±0.02	18525.08	495.201±5.0	495.201±5.0	<b>0.017246</b>
	<sup>228</sup> Ac	144±0.13	18525.08	76.153±1.2	76.153±1.2	<b>0.025853</b>
	<sup>40</sup> K	51±0.23	18525.08	96.421±0.8	98.894±0.8	<b>0</b>
	<sup>235</sup> U	/	/	620.408	651.2	<b>0</b>
	<sup>226</sup> Ra	/	/	507.799	529.483	<b>0.00383</b>
<b>13</b>	<sup>226</sup> Ra+ <sup>235</sup> U	926±0.05	22613	895.843±2.7	937.51±2.7	<b>41.667</b>
	<sup>214</sup> Pb	2830±0.02	22613	406.163±4.7	440.009±4.7	<b>33.846</b>
	<sup>214</sup> Bi	2005±0.02	22613	387.941±3.9	387.941±3.9	<b>0</b>
	<sup>228</sup> Ac	127±0.12	22613	57.995±0.9	57.995±0.9	<b>0</b>
	<sup>40</sup> K	57±0.21	22613	93.055±0.7	95.441±0.7	<b>2.386</b>
	<sup>235</sup> U	/	/	498.792	523.535	<b>24.743</b>
	<sup>226</sup> Ra	/	/	397.052	413.975	<b>16.923</b>
<b>14</b>	<sup>226</sup> Ra+ <sup>235</sup> U	834.3±0.05	15060.71	1659.277±3.8	1736.45±3.8	<b>0.85322</b>
	<sup>214</sup> Pb	2395.8±0.02	15060.71	706.87±6.5	765.776±6.5	<b>0.7056</b>
	<sup>214</sup> Bi	1599±0.02	15060.71	636.026±5.3	636.026±5.3	<b>0</b>
	<sup>228</sup> Ac	123±0.15	15060.71	115.47±1.4	115.47±1.4	<b>0.0665</b>
	<sup>40</sup> K	59±0.20	15060.71	198.012±1.0	203.09±1.0	<b>0.05403</b>
	<sup>235</sup> U	/	/	987.829	1035.55	<b>47.721</b>
	<sup>226</sup> Ra	/	/	671.448	700.901	<b>0.00408</b>

- $\Delta A = A_{\text{mesurée}} - A_{\text{calculée}}$
- $A_{\text{mesurée}}$  : Activité mesurée
- $A_{\text{calculée}}$  : Activité calculée

La courbe de la figure IV.24 illustre la variation des concentrations de l'activité totale entre les différents échantillons.

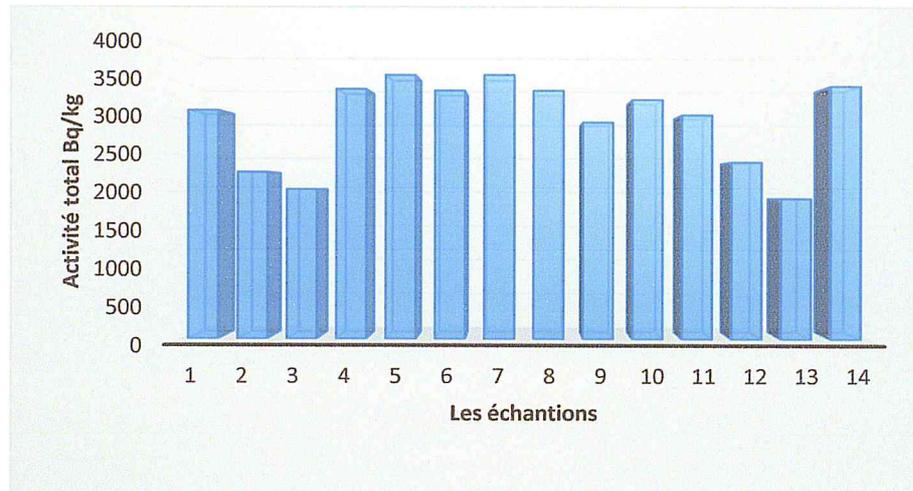


Figure IV.24 : L'activité totale en fonction des échantillons

À partir de la courbe IV.24 illustrant les activités dans les quatorze échantillons analysés, nous pouvons remarquer que les concentrations d'activité dans ces échantillons de minerai sont plus ou moins similaires même si les échantillons 2, 3, 12 et 13 se distinguent par des concentrations moins importantes.

Nous pouvons également constater que la valeur maximale de la concentration est de 3608 Bq/kg et la valeur minimale est de 1919 Bq/kg.

**Tableau IV.4 : Concentration des radionucléides présents dans l'acide phosphorique et dans le phosphogypse**

Échantillon	Radionucléides	Surface	Temps (s)	Acalculée (Bq/kg)	Amesurée (Bq/kg)	$\Delta A$ (Bq/kg)
Acide	$^{226}\text{Ra}+^{235}\text{U}$	341±0.10	61200	215.965±0.8	206.366±0.8	0.009599
	$^{214}\text{Pb}$	208±0.14	61200	18.674±0.6	20.23±0.6	0.001556
	$^{214}\text{Bi}$	141±0.15	61200	17.066±0.5	17.066±0.5	0
	$^{40}\text{K}$	167±0.09	61200	170.547±0.5	170.547±0.5	0
	$^{235}\text{U}$	/	/	198.095	187.718	10.377
	$^{226}\text{Ra}$	/	/	17.87	18.648	0.778
Phosphogypse 1	$^{226}\text{Ra}+^{235}\text{U}$	342±0.13	26798.7	1747.356±1.4	1828.628±1.4	0.081272
	$^{214}\text{Pb}$	977±0.03	26798.7	740.529±2.3	802.24±2.3	0.061711
	$^{214}\text{Bi}$	670±0.04	26798.7	684.636±1.9	684.636±1.9	0
	$^{228}\text{Ac}$	35±0.32	26798.7	84.409±0.4	84.409±0.4	0
	$^{40}\text{K}$	79±0.15	26798.7	681.124±0.7	698.589±0.7	0.017465
	$^{235}\text{U}$	/	/	1034.773	1085.19	0.050417
	$^{226}\text{Ra}$	/	/	712.583	743.438	0.030855
Phosphogypse 2	$^{226}\text{Ra}+^{235}\text{U}$	942±0.05	49301.6	1509.841±1.3	1442.737±1.3	0.067104
	$^{214}\text{Pb}$	2329±0.02	49301.6	529.173±1.9	573.271±1.9	0.044098
	$^{214}\text{Bi}$	1494±0.02	49301.6	457.632±1.6	457.632±1.6	0
	$^{228}\text{Ac}$	80±0.21	49301.6	57.835±0.3	57.835±0.3	0
	$^{40}\text{K}$	122±0.12	49301.6	315.312±0.5	323.396±0.5	0.008084
	$^{235}\text{U}$	/	/	949.334	994.389	0.045055
	$^{226}\text{Ra}$	/	/	493.403	515.452	0.022049

- $\Delta A = A_{\text{mesurée}} - A_{\text{calculée}}$
- $A_{\text{mesurée}}$  : Activité mesurée
- $A_{\text{calculée}}$  : Activité calculée

La courbe suivante représente la variation de l'activité totale dans l'acide et dans le phosphogypse.

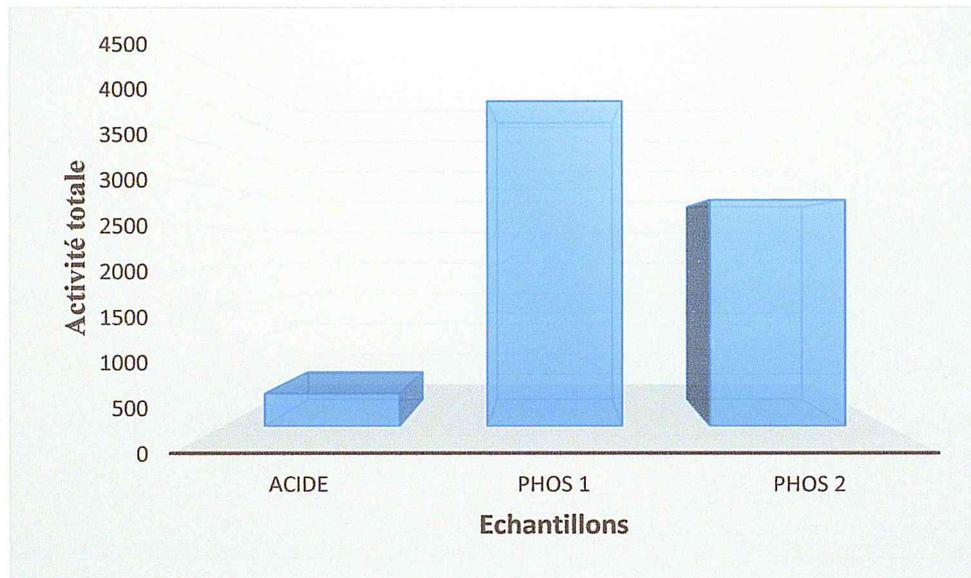


Figure IV.25 : L'activité totale de l'acide et les résidus

- PHOS 1 : phosphogypse 1
- PHOS 2 : phosphogypse 2

Il existe plusieurs radionucléides naturels dans les minerais de phosphates tels que  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{40}\text{K}$  et  $^{228}\text{Ac}$ , avec des concentrations variables.

Pour l'acide et les deux phosphogypses, on a abouti presque aux mêmes conclusions. De plus, on peut remarquer que  $^{228}\text{Ac}$  (911 keV), est présent seulement dans les phosphogypses. Nous avons aussi trouvé que l'uranium migre vers l'acide et le radium vers les phosphogypses, cependant on retrouve dans notre résultat que la concentration de l'uranium est plus important dans le phosphogypse par rapport au radium. Donc, on peut confirmer l'information qui a été déjà mentionnée dans la partie théorique qui stipule qu'au cours du processus de digestion, 90 à 95% de l'uranium dans la roche phosphatée migre vers l'acide phosphorique. Par ailleurs, la plus grande partie du radium dans la roche phosphatée migre vers le phosphogypse (résidu de la production) [15].

### IV.3.5 Interprétation des résultats

À présent, il est admis par tout le monde, et sur la base des études et des mesures entreprises un peu partout dans le monde, que le phénomène des NORM existe dans l'industrie du phosphate ainsi que dans l'industrie pétrolière.

Dans un but comparatif, un échantillon provenant de l'industrie pétrolière a été analysé dans les mêmes conditions. Il ressort que la radioactivité due aux NORM dans l'industrie pétrolière est plus importante que celle rencontrée dans l'industrie du phosphate. Cela signifie que l'impact des NORM dans l'industrie pétrolière est plus important par rapport à l'industrie du phosphate.

La comparaison spectrale est présentée dans la figure IV.26 où le spectre en vert correspond au minerai de phosphate tandis que l'autre à celui obtenu avec l'échantillon de pétrole.

Le tableau IV.5 rassemble les concentrations des radionucléides dans les deux types d'échantillons ainsi que les comparaisons.

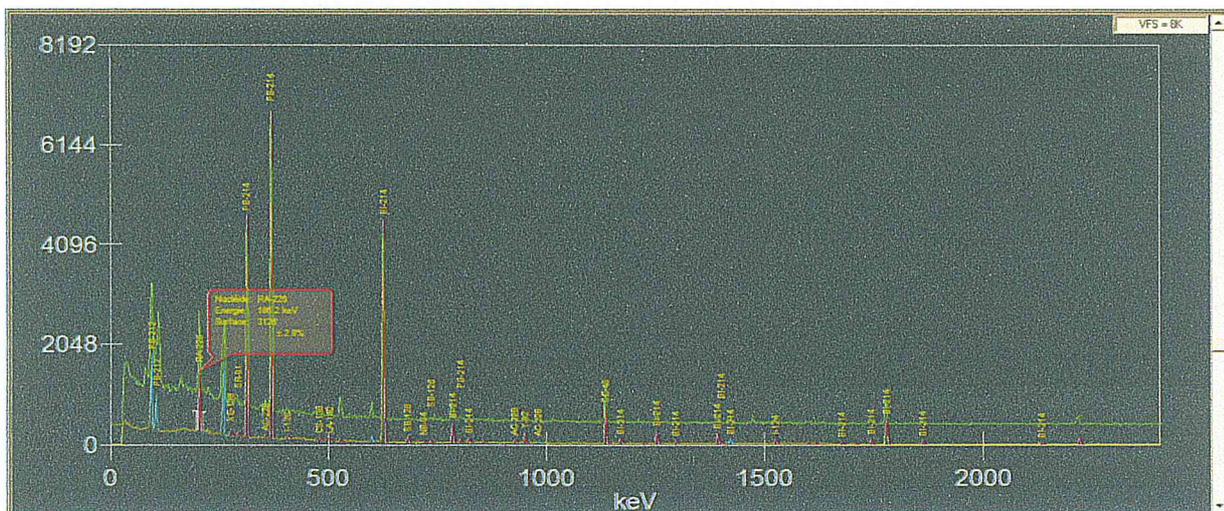


Figure IV.26 : Comparaison spectrale

Tableau IV.5 : Comparaison entre les concentrations des radionucléides

Radionucléide	Activité (Bq/g) (Ech de pétrole)	Activité (Bq/g) (minerai de phosphate)
<b>Ra-226</b>	159278.5	661.51
<b>Pb-214</b>	73946.25	714.648
<b>Bi-214</b>	103126.2	608.372
<b>Ac-228</b>	2690.292	66.423

**Tableau IV.6 :** Les concentrations de Ra-226 et K-40 dans les roches phosphatées dans le monde

Pays	Ra-226 (Bq/kg)	K-40 (Bq/kg)	Références
<b>Egypte</b>	566±28.6	560.1±28	[31]
<b>Finlande</b>	10	110	[32]
<b>Pakistan</b>	440	207	[32]
<b>Brésil</b>	256	1202	[33]
<b>Soudan</b>	4131	62	[34]
<b>Turkie</b>	625	256	[35]
<b>Tanzanie</b>	5022	286	[36]
<b>USA</b>	1600	/	[37]
<b>Maroc</b>	1600	10	[37]
<b>Jordanie</b>	1044	8	[38]
<b>Tunisie</b>	821	32	[38]
<b>Algérie</b>	619	22	[38]
<b>Algérie</b>	748.73	206.99	Présente étude

Dans le tableau IV.6, en comparant les concentrations de radionucléides dans les roches phosphatées que nous avons obtenues avec celles présentes dans les roches phosphatées dans d'autres pays, nous pouvons remarquer que les concentrations de certains pays s'approchent avec les nôtres mais les concentrations de radioactivité dans les roches phosphatées d'autres pays sont moins importantes.

**Tableau IV.7 :** Comparaison entre les concentrations de phosphogypse

Radionucléides	Phosphogypse (Bq/kg) [39]	Phosphogypse (Bq/kg) (notre travail)
<b>K-40</b>	3.43±0.85	323.396±0.5
<b>Pb-214</b>	719±21	740.529±2.3
<b>Bi-214</b>	685±22	684.636±1.9
<b>Ra-226</b>	694±28	743.438
<b>Ac-228</b>	5±0.48	698.589±0.7

Dans le tableau IV.7, en comparant les concentrations des radionucléides présents dans nos échantillons de phosphogypse avec celles obtenues par Laurent FERREUX et col, nous pouvons remarquer que les concentrations de Ra-226 et ses descendants sont proches. Par contre, les concentrations en K-40 et Ac-228 dans nos échantillons sont plus importantes que celles reportées par Laurent FERREUX.

#### IV.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons traité la technique de spectrométrie gamma qu'on a utilisée pour analyser nos échantillons de minerai de phosphate. Nous avons aussi synthétisé de l'acide phosphorique et on a pu ainsi obtenir les résidus de cette synthèse à savoir le phosphogypse. Ce dernier a fait l'objet d'analyse de radioactivité par la technique de spectrométrie gamma.

D'après les résultats d'analyse obtenus, on remarque que nos échantillons contiennent différents radionucléides naturels tels que Ra-226 et ses descendants, K-40 et l'Ac-228 avec des concentrations variables d'un échantillon à l'autre, de même pour l'acide et les résidus. De plus, on a confirmé qu'effectivement au cours du processus de digestion, 90 à 95% de l'uranium dans la roche phosphatée migre vers l'acide phosphorique. Par contre, la plus grande partie du radium contenu dans la roche phosphatée migre vers le phosphogypse.

## *Chapitre V : Estimation des doses reçues par les travailleurs*

# *Chapitre V : Estimation des doses reçues par les travailleurs*

## **Introduction**

Dans ce chapitre, nous allons compléter le travail réalisé jusqu'ici à savoir la détermination des concentrations de radioactivité dans les échantillons de phosphate en procédant à l'estimation de la dose reçue par les travailleurs des mines de phosphate qui sont censés manipuler ce minerai. Il faut savoir que cet objectif ne peut être directement atteint car il faut d'abord connaître plusieurs paramètres tels que la distance, le temps de séjour, et les conditions de travail.

Nous allons donc supposer plusieurs scénarios d'exposition des travailleurs des mines de phosphate, et nous déterminerons la dose reçue par ces travailleurs grâce à l'emploi d'un logiciel de calcul « DOSIME X ».

## **V.1 Présentation de DOSIMEX**

Le pack DOSIMEX se compose de 4 dossiers, les 3 premiers contenant les codes et le dernier les annexes associées à l'ouvrage.

1. DOSIMEX OPERATIONNEL
2. DOSIMEX PEDAGOGIQUE
3. DOSIMEX MESURE
4. ANNEXES

Chaque dossier « DOSIMEX » contient à son tour des sous-dossiers pour chaque code. Un Menu d'accueil permet de les lancer directement, par exemple le sommaire de Dosimex Opérationnel contient quatre codes à savoir Dosimex-B, Dosimex-GX, DOSIMEX-I2 et Dosimex-N.

Dans notre étude, on va utiliser le code **Dosimex-GX** spécifique aux rayonnements gamma et X dans le cas d'une exposition externe et dans le cas d'une exposition interne, on va utiliser le code **DOSIMEX-I2** [40].

### **V.1.1 Principes de fonctionnement du code DOSIMEX-GX**

Le code DOSIMEX-GX est un code de calcul permettant d'évaluer les débits d'équivalent de dose gamma et X générés par des émetteurs de rayonnements ionisants de type radionucléide (photons gamma) ou appareils (générateurs X) [41].

### **V.1.2 Utilisation DOSIMEX-GX**

L'utilisation de DOSIMEX est mise en œuvre en plusieurs étapes. La toute première consiste à choisir l'une des bases de données offertes par le code pour différents radionucléides.

#### **V.1.2.1 Choix de base de données radionucléides**

Le code DOSIMEX-G 2.0 utilise, pour les calculs associés à des sources gamma, différentes bases de données de radionucléides (spectre énergies et intensités d'émission). Quatre bases de données sont disponibles et peuvent être mises en œuvre en cliquant sur la barre de commande « Choix Base de données radionucléides » (Figure V.1).

Dans notre cas, on a choisi la base de données complète avec raies gamma regroupées. Avec cette base, nous avons la possibilité de choisir un pseudo-émetteur monoénergétique pour des calculs paramétriques plus rapides. Les énergies disponibles sont limitées à des valeurs précises (10 keV, 20 keV...).

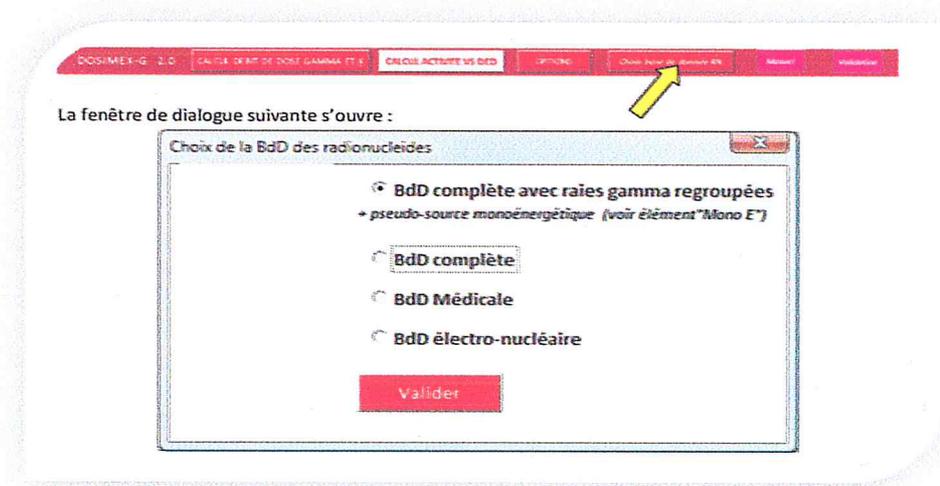


Figure V.1 : Fenêtre de dialogue pour le choix de la base de données

### V.1.2.2 Calcul du débit de dose gamma

#### V.1.2.2.a Choix de la géométrie

À présent, il faut ensuite choisir une géométrie pour le calcul de débit de dose. Pour ce faire, il suffit de cliquer sur le bouton actif « Calcul de dose gamma et X » pour faire apparaître la boîte de dialogue proposant les différentes sources possibles, gamma ou X (Figure V.2).

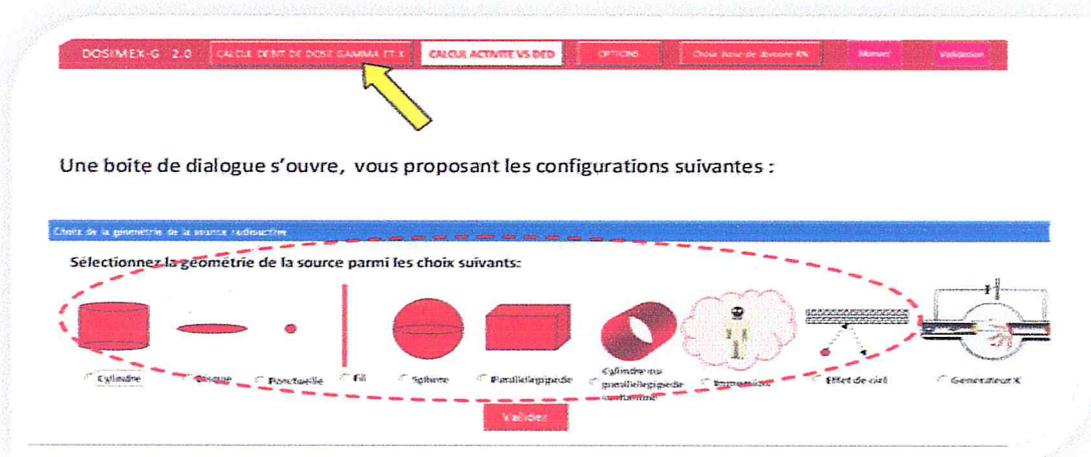


Figure V.2 : Fenêtre de dialogue pour le choix de la géométrie de la source

### V.1.2.2.b Choix du terme source

Une fois la géométrie de la source est choisie, nous devons procéder au choix du terme source.

La boîte de dialogue « Terme source » permet de choisir le ou les radionucléides présents, et de saisir les activités correspondantes (Figure V.3).

Figure V.3 : Fenêtre de dialogue pour le choix du terme source

Après validation, l'application propose de saisir éventuellement un autre radionucléide supplémentaire (Figure V.4).

Figure V.4 : Fenêtre de dialogue pour l'ajout d'un nouveau radionucléide

Si la réponse est affirmative, l'application ouvrira une nouvelle fenêtre « Terme source », et on pourra utiliser ainsi jusqu'à 15 radionucléides dans le calcul.

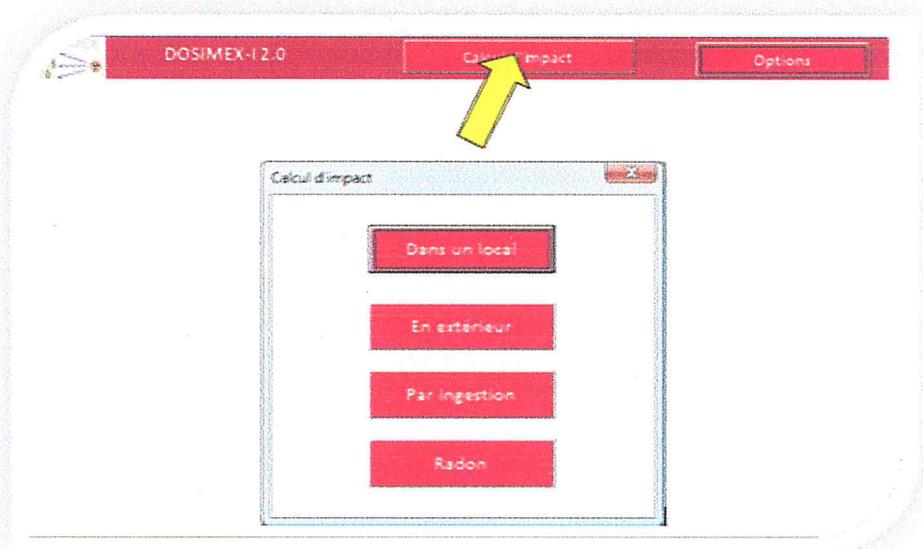
Par contre, si la réponse est négative, l'application lance les calculs.

### V.1.3 DOSIMEX-I 2

Le code « Dosimex-I 2 » permet d'effectuer des calculs d'impact radiologique suite à des incidents de contamination (Figure V.5) avec les situations suivantes [42] :

- dans un local
- en extérieur
- par ingestion
- lié au gaz radon.

Dans notre cas, on a choisi les calculs d'impact dans un local prenant en compte les expositions liées à l'inhalation (exposition interne).



**Figure V.5 :** Fenêtre de dialogue pour le choix du type de calcul

On passe à l'étape du choix des caractéristiques du local. L'application affiche une fenêtre qui permet de saisir les différents paramètres spécifiques au local (Figure V.6).

Figure V.6 : Fenêtre de dialogue pour indiquer les caractéristiques du local

Après validation, une nouvelle fenêtre s'ouvre, et on doit saisir les informations relatives aux radionucléides dispersés dans l'atmosphère du local tel que montré sur la figure V.7.

Figure V.7 : Fenêtre de dialogue pour saisir les informations sur les radionucléides

Notons que selon le cas spécifique étudié, on peut toujours ajouter des radionucléides.

Pour calculer la dose intégrée reçue par un travailleur sur un intervalle de temps donné, il suffit de préciser son heure d'entrée et celle de sortie. Nous disposons en parallèle de l'information du débit de dose dû à **l'inhalation immersion et dépôt**. Cliquez ensuite sur le rectangle

Calculer doses efficaces intégrées

En faisant cela, nous obtenons la valeur de la dose intégrée (Figure V.8).

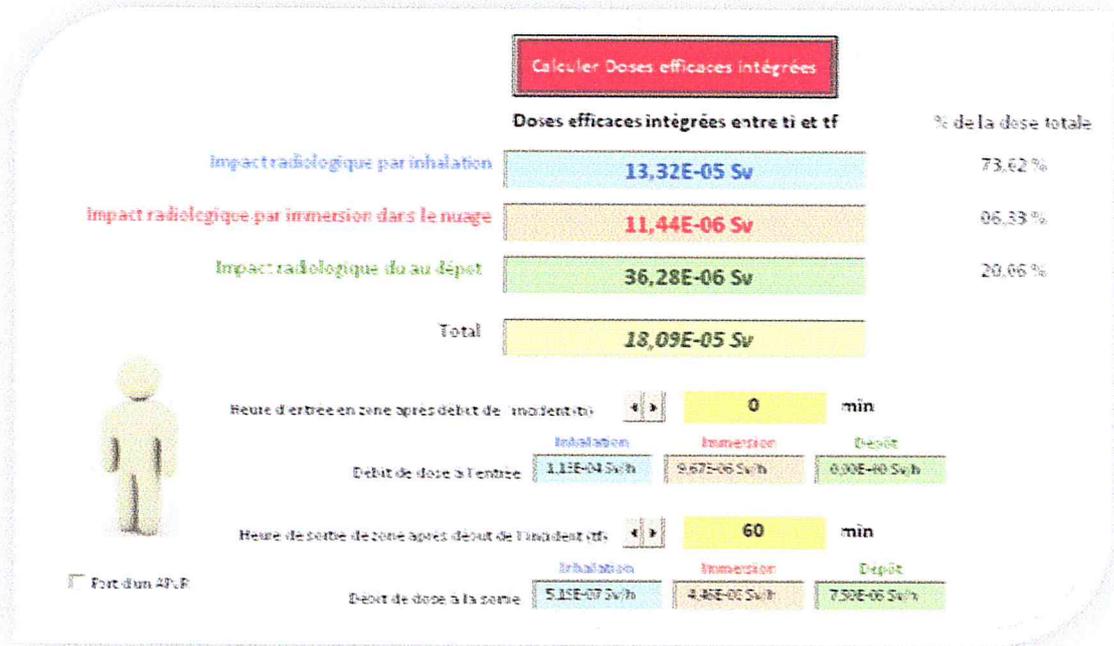


Figure V.8 : Fenêtre de dialogue pour le calcul des doses intégrées

## V.2 Scénarios d'expositions

Dans notre étude, nous avons traité plusieurs scénarios selon des cas que nous avons jugés plausibles et que nous pouvons rencontrer dans l'industrie du phosphate. Nous avons essayé de tenir compte des principales voies d'exposition qui peuvent induire un impact radiologique pour les travailleurs des mines de phosphate ainsi que pour les travailleurs des installations de traitement des minerais (production d'acide phosphorique), soit :

- exposition externe au contact ou à distance de la source étudiée ;
- exposition interne, par inhalation ou ingestion, de substances contaminées.

Les sources volumiques sont considérées comme contaminé de manière homogène dans la matrice qui les constitue. Nous devons donc indiquer la nature de cette matrice selon le cas étudié. Les matériaux constitutifs de la matrice source proposé ne contient pas les matériaux de source utilisée dans notre étude, donc on a créé deux nouveaux matériaux **MINERAIS** et **PHOSPHOGYPSE** selon les cas qu'on a traité.

### V.2.1 Secteur des mines

Dans ce cas, les mineurs sont susceptibles d'être soumis à une exposition externe et interne à travers le contact du minerai de phosphates, durant le processus d'extraction.

Les scénarios étudiés ont été conçus à partir de la description des postes de travail étudiés.

### V.2.1.1 Exposition externe

- On suppose que le travailleur est exposé à une source radioactive de minerai d'un volume d'une tonne (1000 kg), et lorsqu'il travaille dans une mine à ciel ouvert, on peut supposer que la source est un **nuage d'air contaminé** (Figure V.9).

Nous avons supposé trois configurations des sources auxquelles le mineur est exposé. La source contient donc les radionucléides suivants :

- 1- Le  $^{226}\text{Ra}_{\text{eq}}$  (en équilibre), l'U-235 et le K-40
- 2- Le Ra-226, U-235 et le K-40
- 3- Le Ra-226, Pb-214, Bi-214, l'U-235 et le K-40

Pour le volume horaire, nous avons supposé 3 possibilités pour le temps où le travailleur occupe son poste de travail près de la source radioactive

- Il travaille 8 heures par jour (2000 h/an)
- Il travaille 4 heures par jour (1000 h/an)
- Il travaille 2 heures par jour (500 h/an)

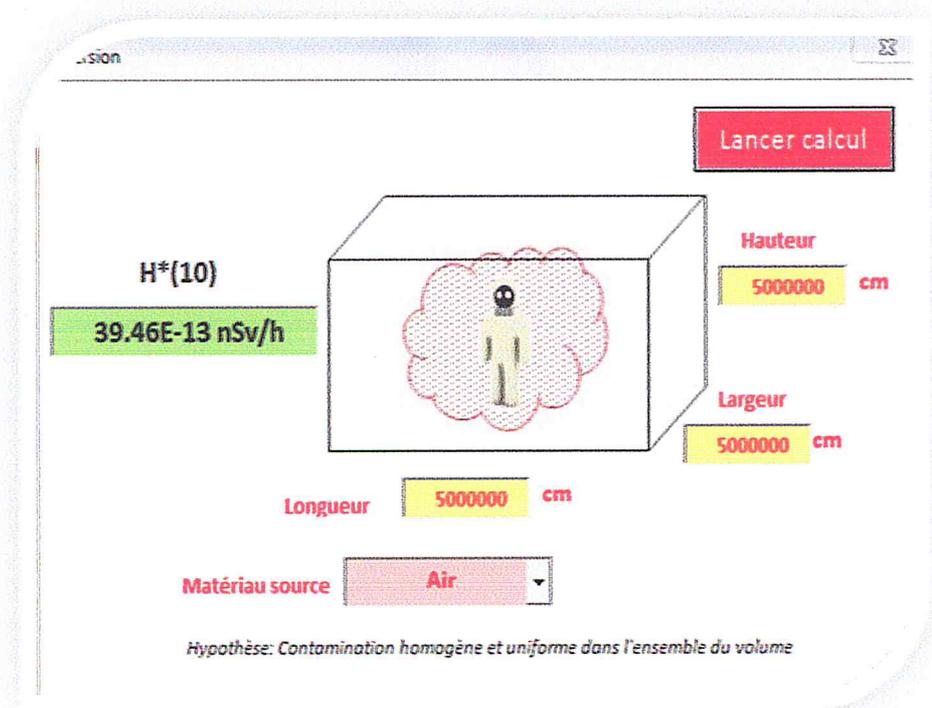


Figure V.9 : Fenêtre de dialogue représentant le cas d'une immersion

À présent, toutes les étapes exigées par la mise en œuvre de DOSIMEX ont été effectuées, le calcul peut donc être lancé. Les doses reçues pour les différentes situations sont rassemblées dans le tableau V.1

Tableau V.1: Les doses annuelles reçues par les mineurs en cas d'immersion

Radionucléides	Dose reçue (mSv/h)		
	2000 h/an	1000 h/an	500 h/an
$^{226}\text{Ra}_{\text{eq}}$ (en équilibre), U-235 et K-40	9.44E-03	4.72E-03	2.36E-03
Ra-226, U-235 et K-40	1.08E-03	5.38E-04	2.69E-04
Le Ra-226, Pb-214, Bi-214, l'U-235 et le K-40	9.05E-03	4.52E-03	2.26E-03

➤ Il existe une autre possibilité d'exposition, qui est de supposer que le travailleur est exposé à une source d'une tonne de minerai. La géométrie la plus proche de la réalité nous semble être le parallélépipède. C'est-à-dire qu'une tonne de minerai occupera un volume de 1000 m<sup>3</sup> (Figure V.10). On suppose que cette source contient les radionucléides suivants :

- Le  $^{226}\text{Ra}_{\text{eq}}$ (en équilibre), l'U-235 et le K-40
- Le Ra-226, U-235 et le K-40
- Le Ra-226, Pb-214, Bi-214, l'U-235 et le K-40

Le temps et la distance sont des paramètres très importants pour remonter à la dose, pour se rapprocher de la réalité. Différentes possibilités de distance entre le travailleur et la source (0.5 m, 1 m et 10 m), et de temps d'exposition du travailleur (2000 h/an, 1000 h/an et 500 h/an) sont étudiées. Le tableau V.2 rassemble les résultats obtenus par DOSIMEX dans ce cas.

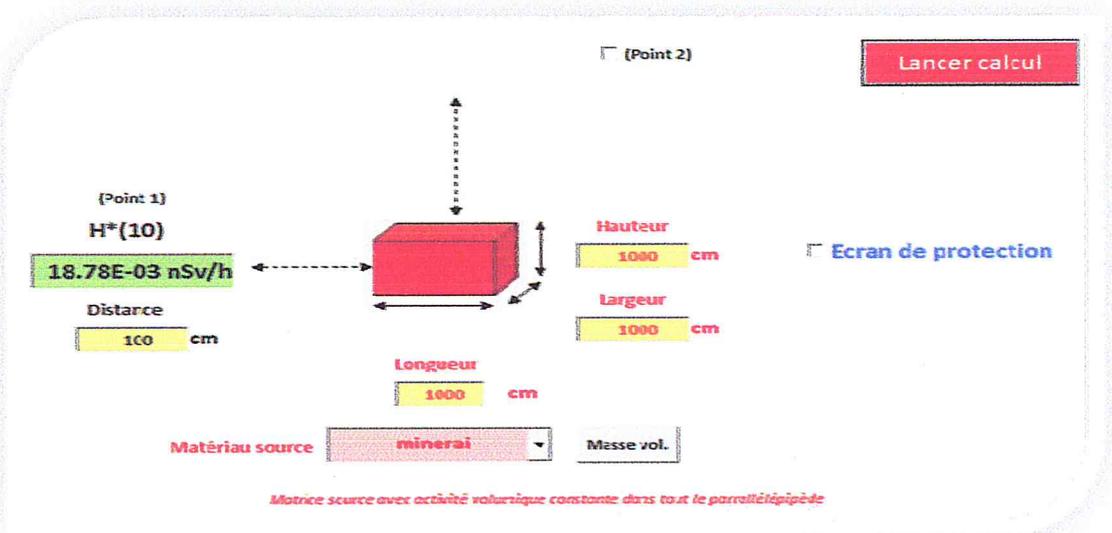


Figure V.10 : Fenêtre de dialogue représentant le cas d'exposition avec une source parallélépipédique simulant le minerai

Tableau V.2 : Les doses annuelles reçues par les mineurs en exposition externe

Distance	Radionucléides	Dose reçue (mSv)		
		2000 h/an	1000 h/an	500 h/an
0.5 m	Le <sup>226</sup> Ra <sub>eq</sub> (en équilibre), l'U-235 et le K-40	1.57E-01	7.87E-02	3.94E-02
	Le Ra-226, U-235 et le K-40	1.50E-02	7.51E-03	3.76E-03
	Le Ra-226, Pb-214, Bi-214, l'U-235 et le K-40	1.50E-01	7.51E-02	3.76E-02
1 m	Le <sup>226</sup> Ra <sub>eq</sub> (en équilibre), l'U-235 et le K-40	3.94E-02	1.97E-02	9.84E-03
	Le Ra-226, U-235 et le K-40	3.76E-03	1.88E-03	9.39E-04
	Le Ra-226, Pb-214, Bi-214, l'U-235 et le K-40	3.76E-02	1.88E-02	9.39E-03
10 m	Le <sup>226</sup> Ra <sub>eq</sub> (en équilibre), l'U-235 et le K-40	3.94E-04	1.97E-04	9.84E-05
	Le Ra-226, U-235 et le K-40	3.76E-05	1.88E-05	9.39E-06
	Le Ra-226, Pb-214, Bi-214, l'U-235 et le K-40	3.76E-04	1.88E-04	9.39E-05

### V.2.1.2 Exposition interne

Après étude du cas d'exposition externe, on s'intéresse à l'exposition interne car le mineur étant exposé aux déchets NORM risque d'être contaminé. Pour simplifier, on suppose que le travailleur va être contaminé par la source <sup>226</sup>Ra<sub>eq</sub> (en équilibre), l'U-235 et le K-40.

Dans le même contexte de simplification, nous avons supposé deux périodes d'exposition (Figure V.11) :

- de 0 à 10 min
- de 0 à 60 min

Pour optimiser notre étude, et pour s'approcher de la réalité du terrain, nous avons pris en considération l'échantillon le plus radioactif parmi les quatorze échantillons de phosphate dont on a mesuré les concentrations radioactives, il s'agit de l'échantillon 5.

Pour ce cas de contamination interne, nous avons investigué les trois voies de contamination à savoir l'inhalation, l'immersion dans un nuage radioactif, et enfin par dépôt sur le corps humain.

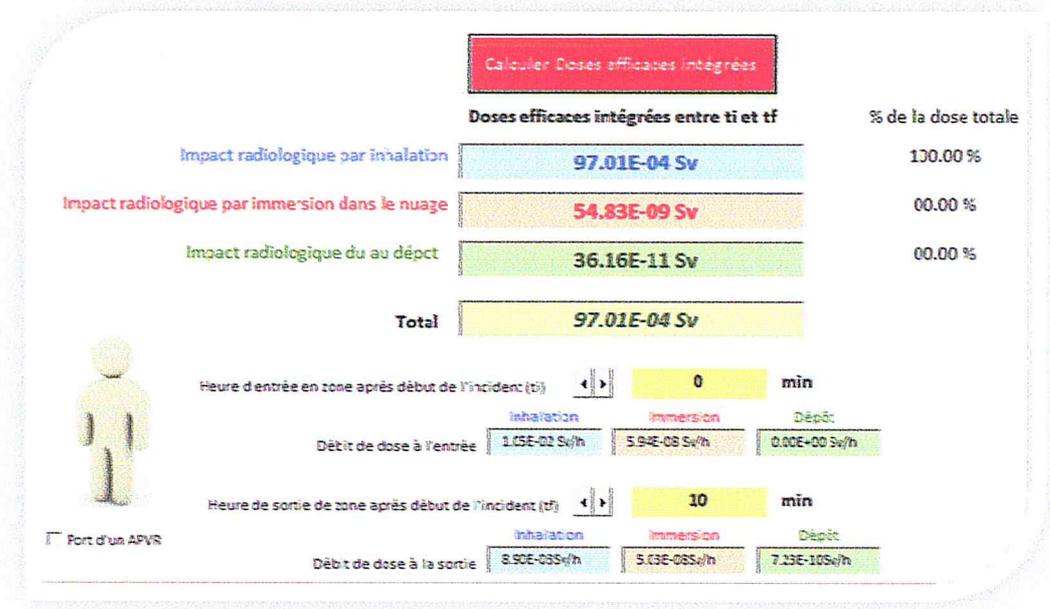


Figure V.11 : Fenêtre de dialogue qui représente le cas d'explosion interne

En utilisant le code DOSIMEX, les calculs donnent les résultats rassemblés dans le Tableau V.3.

Tableau V.3 : Doses reçues par les mineurs en cas d'exposition interne

Période (min)	Dose efficace intégrée (mSv)		
	Par inhalation (mSv/h)	Par immersion (mSv/h)	Par dépôt (mSv/h)
[0-10]	8.90	5.03 E-05	7.23 E-07
[0-60]	7.09 E-02	6.36 E-07	3.26 E-05

### V.2.2 Phosphogypse

La production de l'acide phosphorique pour l'industrie à partir du minerai de phosphate extrait des mines est l'une des applications les plus intéressantes. L'Algérie tente depuis des décennies de créer des installations pour produire cet acide qui sera destiné aussi bien pour répondre aux besoins nationaux, en augmentation continue, que pour l'exportation.

Donc, à l'heure actuelle, l'Algérie exporte tout le phosphate extrait des mines sous sa forme brute. Durant ces dernières années, les conditions économiques et financières sont devenues difficiles ce qui a encouragé les décideurs à relancer de manière effective la production d'acide phosphorique.

Avec cette relance, la question des déchets NORM et plus particulièrement celle liée à la génération de grandes quantités de phosphogypse comme résidu est à prévoir. Pour toutes ces

raisons, nous avons abordé ce point afin de voir l'impact radiologique sur les travailleurs dans le cas d'une exposition au phosphogypse.

Pour cela, nous avons simulé des cas d'exposition selon le scénario suivant :

On suppose que le travailleur est exposé à une source de déchet radioactif d'un volume de 5 tonnes (5000 kg) ce qui représente le volume produit après attaque acide du minerai de phosphate. On suppose également que la source d'exposition a une géométrie de parallélépipède contenant la source  $^{226}\text{Ra}_{\text{eq}}$  (en équilibre), l'U-235 et le K-40.

En ce qui concerne le temps de travail, trois hypothèses sont proposées, 8 heures par jour soit 2000 heures par an, 4 heures par jour soit 1000 heures par an et 2 heures seulement par jour soit 500 heures par an).

Concernant la position occupée par le travailleur au niveau de son poste de travail par rapport à la source, on distingue trois positions à 1 m à 10 m et à 100 m.

Pour l'activité, là aussi et dans un souci d'optimisation de la simulation, nous avons choisi la concentration radioactive la plus élevée que nous avons obtenue lors de la mesure par spectrométrie gamma.

Les résultats de la simulation de l'exposition des travailleurs aux déchets NORM (phosphogypse) sont donnés dans le tableau V.4.

**Tableau V.4 : Les doses reçues par les travailleurs dans le cas du phosphogypse**

Distance (m)	Dose reçue (mSv)		
	2000 h/an	1000 h/an	500 h/an
1 m	6.21	3.11	1.55
10 m	6.21E-02	3.11E-02	1.55E-02
100 m	6.21E-04	3.11E-04	1.55E-04

### V.3 Conclusion

À partir des calculs réalisés pour différents scénarios concernant l'exposition des travailleurs aux déchets NORM dans le cas des mines de phosphate, le risque radiologique s'avère insignifiant. Les scénarios choisis montrent que les doses annuelles d'exposition de ces travailleurs, qui sont considérés comme membres du public, ne dépassent pas la limite réglementaire pour le public qui est de 1 mSv/an.

Cependant, malgré le fait que les doses reçues par ces travailleurs soient faibles, cela n'exclut pas d'adopter les règles de radioprotections afin de réduire encore plus, le risque d'exposition. A titre d'exemple, nous pouvons envisager, si c'est possible, l'augmentation de la distance entre le travailleur et la source d'exposition ou encore la réduction du temps de séjour au niveau de ces postes de travail.

Par contre, dans le cas des déchets de phosphogypse, le risque des NORM s'est avéré réel et significatif et les doses reçues sont relativement considérables comparées à celles reçues dans les mines. En effet, nous avons trouvé que pour les travailleurs qui occupent des postes situés à 1 m des déchets NORM, ce qui correspond souvent à des cas réels, sont susceptibles de recevoir des doses supérieures aux limites réglementaires pour le public soit 1 mSv/an.

Ces résultats préliminaires nous permettent de dire qu'il est nécessaire d'entreprendre d'autres investigations plus poussées et plus précises afin de compléter cette étude et de pouvoir en tirer des conclusions qui soient proches de la réalité vécue par ces travailleurs en contact avec ces déchets NORM phosphogypse. Une telle étude permettra de statuer si ces travailleurs devront être reclassés dans la catégorie des travailleurs directement affectés aux travaux sous rayonnements avec toutes les conséquences réglementaires, techniques, et administratives qui pourraient découler de ce reclassement.

De toutes les manières, et à titre préventif, les règles de radioprotection devront être respectés autant pour ces travailleurs que pour l'environnement de travail dans lequel ils activent

## Conclusion générale

L'objectif de ce travail était d'estimer la dose reçue par les travailleurs des mines de phosphate en étudiant le phénomène des NORM.

L'étude de la réglementation nationale en matière de radioprotection montre que celle-ci est basée sur les recommandations de la CIPR de 1990 alors que cette commission a émis de nouvelles recommandations en 2007, et elle est sur le point d'adopter de nouvelles recommandations basées sur les dernières évolutions de la recherche scientifique. Par conséquent, une mise à jour de notre réglementation devient nécessaire, et il serait intéressant que notre prochaine mise à jour des textes réglementaires algériens soit basée sur les dernières recommandations et donc les dernières évolutions scientifiques dans le domaine de la radioprotection.

Concernant l'importance du phénomène NORM dans l'industrie du phosphate et son impact sur les travailleurs et sur l'environnement, nous avons employé la spectrométrie gamma qui s'est avérée précise et très appropriée à la mesure de nos échantillons. Elle nous a permis d'obtenir les concentrations de radioactivité naturelle dans tous les échantillons prélevés. En injectant les valeurs obtenues dans le code de calcul dosimétrique, et en faisant les hypothèses nécessaires pour les scénarios d'exposition, nous avons pu estimer les doses reçues par les travailleurs.

À partir des calculs réalisés pour différents scénarios concernant l'exposition des travailleurs aux déchets NORM dans le cas des mines de phosphate, le risque radiologique s'avère insignifiant.

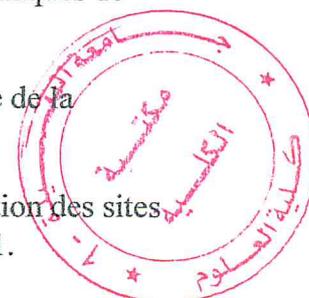
Par contre, pour les travailleurs des usines de production d'acide phosphorique, les résultats sont beaucoup moins rassurants. En effet, les déchets NORM auxquels ils sont exposés et plus particulièrement le phosphogypse qui est un résidu du processus de production, pourraient induire des doses relativement élevées.

Ces résultats préliminaires nous permettent de dire qu'il est nécessaire d'entreprendre d'autres investigations plus poussées et plus précises afin de compléter cette étude et de pouvoir en tirer des conclusions qui soient proches de la réalité vécue par ces travailleurs.

## Références

- [1] A. Nésméianov, LES ELEMENTS RADIOACTIFS ET LEURS APPLICATION, 1957.
- [2] J.F. Bottollier - Depois, S. Charmasson, L. Foulqu, P. Germain, D. Klein, J. Levrard, P. Livolsi, J. Lochard, J. Lombard, M. Masson, H. Maubert and H. Métivier, A. Rannou, V. Tort, LA RADIOACTIVITE NATURELLE EN 10 EPISODES, Société Française de Radioprotection .
- [3] D. Cressier, Synthèse et Evaluation de Nouveaux Dérivés Organiques et Organométalliques Contre les Effets des Rayonnements Ionisants, l'Université Toulouse III - Paul Sabatier, 13 Octobre 2010.
- [4] Introduction au rayonnement, Canada : la Commission canadienne de sûreté nucléaire (CCSN), Décembre 2012.
- [5] G. T. H. de CHOUDENS, INTRODUCTION A LA RADIOPROTECTION, La société Française de Radioprotection , 1985.
- [6] *JOURNAL OFFICIEL DE LA REPUBLIQUE ALGERIENNE* N°27, 4 Rabie El Aouel 1426 13 avril 2005.
- [7] Les accidents dus aux rayonnements ionisants, L'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN), 15 février 2007.
- [8] *JOURNAL OFFICIEL DE LA REPUBLIQUE ALGERIENNE*, p. 595, 28 mai 1986.
- [9] *JOURNAL OFFICIEL DE LA REPUBLIQUE ALGERIENNE*, 31 août 1988.
- [10] International Commission on Radiation Protection (ICRP), Publication 103 de l'ICRP, Recommandations 2007 de la Commission internationale de protection radiologique, Lavoisier, Ed., Paris: TEC & DOC, 2009.
- [11] Evolution of ICRP Recommendations 1977, 1990 and 2007, NUCLEAR ENERGY AGENCY, Radiological Protection 2011.
- [12] Naturally Occurring Radioactive Material (NORM VII), VIENNA: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 2015.
- [13] R. D. BOIS, La Radioactivité Naturelle Technologiquement Renforcée, Décembre 2005
- [14] C. PROUILLAC, Synthèse et évaluation de nouveaux composés organiques et phosphorés contre les effets des rayonnements ionisants. Etude de leur mécanisme d'action in vitro, 16 octobre 2006.
- [15] Radiation Protection and Management of NORM Residues in the Phosphate Industry, VIENNA: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 2013.

- [16] A. B. AIDER NABILA, Influence des paramètres de broyage sur les caractéristiques minéralogiques et texturales du minerai de phosphate noir de gisement de Kef Es Sennoun de la Mine de Djebel Onk (Tébessa-Algérie), UNIVERSITE ABDERAHMANE MIRA-BEJAIA, 24/06/2015.
- [17] A. D. CHAIBI KOUSSAILA, Elaboration d'un plan d'échantillonnage du minerai de phosphate de gisement de Kef Essenoun de la mine de djebel Onk ( Tébessa -Algérie), Université Abderrahmane Mira - Bejaia, 06 /07 /2017.
- [18] L. C. d. p. d. m. d. travail, Comité sectoriel de main-d'œuvre de l'industrie des mines, 2016.
- [19] M.-N. AMIOT, MESURES ET SIMULATION EN METROLOGIE DE LA MESURE D'ACTIVITE PAR SCINTILLATION LIQUIDE ET CHAMBRE D'IONISATION PRESSURISEE, FRANCE : Commissariat à l'Energie Atomique CEA , 2014.
- [20] F. J. K. W. S. D. A. E. Adriens AG, Analytical Chemistry, 1992.
- [21] Azbouche.A, "Développement d'une méthodologie d'analyse par spectrométrie gamma par activation neutronique pour l'étude de la distribution des radio-traceurs et des terres rares dans le sol," 2015.
- [22] L. e. Rancoita.P.G, Principles of radiation interaction in matter and detection, Singapore : World Scientific Publishing, 2004.
- [23] F. Courtine, Etalonnage d'un spectromètre gamma en vue de la mesure de la radioactivité naturelle. Mesures expérimentales et modélisation par techniques de Monte-Carlo, 16 May 2007.
- [24] M. B. TEKAYA, Préparation d'un matériau de référence pour la mesure de la radioactivité naturelle, 11-01-2010.
- [25] A. d. S. N. (. Institut de Radioprotection et Surté Nucléaire (IRSN), Gestion des sites potentiellement pollués par des substances radioactives, Décembre 2011.
- [26] K. A. BOUAICHA Abdelkader, Optimisation des paramètres de la récupération du phosphate des eaux usées et sa valorisation dans la synthèse de l'acide phosphorique, Université Abderrahmane Mira de Bejaia, 2017.
- [27] Gilbert le petit, Guy Granier, Spectrométrie gamma appliquée aux échantillons de l'environnement, TEC & DOC ed., Commissariat à l'Energie Atomique Cea.
- [28] M. I. A. D. P. M. A. H. S. M. A. I. M. Mehade Hasan, Natural Radioactivity and Assessment of Associated Radiation Hazards in Soil and Water Samples Collected from in and around of the Barapukuria 2×125 MW Coal Fired Thermal Power Plant, Dinajpur, Bangladesh, Journal of Nuclear and Particle Physics, 2014.
- [29] R. Firestone, Table of Isotopes, V. Shirley, Ed., New York, 1998.



- [30] W. Walshe, Gamma-ray Spectroscopy Declan Cockburn, Lab partner, 2005.
- [31] M. U. A. E.-T. Adel G.E. Abbady, Natural radioactivity and dose assessment for phosphate rocks from Wadi El-Mashash and El-Mahamid Mines, Egypt, Journal of Environmental Radioactivity , 2005.
- [32] K. K. H. T. M. K. A. A. N. Khan, Radiometric analysis of Hazara phosphate rock and fertilizers in Pakistan, Journal of Environmental Radioactivity , 1998.
- [33] D. B. F.T. Conceição, Radionuclide's, heavy metals and fluorine incidence at Tapira phosphate rocks, Brazil, and there by-products, Environ. Pollut., 2006.
- [34] A. H. E. Sam, The natural radioactivity in phosphate deposits from Sudan, The Science of the Total Environment 16, 173 -178., 1995.
- [35] S. A. A. V. A. K. T. Akyuz, Radioactivity of phosphate ores from Karatas-Mazidag phosphate deposit of Turkey., J. Radioanal. Nucl. Chem. 243, 2000.
- [36] M. H. E. Makweba, The natural radioactivity of the rock phosphates, phosphatic products and their environmental implications, The Science of the Total Environment 133, 99e110, 1993.
- [37] R. Guimond, Radium in fertilizers Technical Report No.310, The Environmental Behaviour of Radium. International Atomic Energy Agency (IAEA).
- [38] M. Olszewska-Wasiolek, Estimates of the occupational radiological hazard in phosphate fertilizers industry in Poland, Radiation Protection Dosimetry 58, 269-276., 1995.
- [39] G. M. T. B. Laurent FERREUX, Détermination des activités des éléments des chaînes naturelles dans un échantillon de phosphogypse dans le cadre d'une comparaison AIEA, Laboratoire National Henri Becquerel Cea, 10-04-2008.
- [40] G. L. Alain VIVIER, Calculs de doses générées par les rayonnements ionisants, L'institut national des sciences et techniques nucléaires (instn).
- [41] G. L. Alain VIVIER, Manuel d'utilisation de DOSIMEX-GX 2.1, L'institut national des sciences et techniques nucléaires (instn), AVRIL 2017.
- [42] G. L. Alain VIVIER, CALCUL DE DOSES GENEREES PAR LES RAYONNEMENTS IONISANTS, L'Institut national des sciences et techniques nucléaires (instn), AVRIL 2017.

