

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



Faculté des sciences
Département de physique

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

Option : **Physique des Rayonnements**

Thème :

**Évaluation du risque radiologique dû aux activités minières à
Djebel Onk De la région de Tébessa–Algérie**

Présenté par :

HAMZA Noussaiba & GUERMACHE Siham

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

KHELIFI Rachid	Professeur	USDB	Président
MAZIDI Samir	Chercheur Principal (Docteur)	CRND/COMENA	Examineur
ZIDOUNI Faiza	Professeur	USTHB	Encadreur
AZLI Tarek	Chercheur Principal (Docteur)	CRND/COMENA	Co-Encadreur

Remerciements

Ces travaux de mémoire ont été réalisés au centre de recherche nucléaire de Draria (CRND) à Alger, au sein de la division physique et applications nucléaires (DPAN).

*Tout d'abord, nous tenons à exprimer notre profonde gratitude à **Madame ZIDOUNI Faïza**, Professeur à l'Université des Sciences et Technologie Houari Boumediene, d'avoir bien voulu diriger ce travail.*

*Nous exprimons également nos sincères remerciements et notre gratitude à **Mr AZLI Tarek**, Chercheur Principal et Responsable du Laboratoire d'Analyse par Activation Neutronique au CRND, pour son accueil au centre et d'avoir enrichi nos connaissances et pour son soutien permanent durant tout le stage.*

*Nous tenons à remercier vivement **Mr le Professeur KHELIFI Rachid** d'avoir bien voulu nous faire l'honneur de présider le jury d'examen. Nous le remercions également pour sa disponibilité et sa qualité humaine.*

*Que **Mr MAZIDI Samir** trouve ici l'expression de nos gratitude pour avoir accepté l'examen de ce travail.*

*Nous remercions les plus spécifiques sont adressés à tous les membres de l'équipe du laboratoire d'analyse au CRND, précisément **Mr MAZIDI Samir**, **Mr BENBOUZID Sofiane**, **Mr HADRI Abd Razeq** et aussi **Mr KHELILI Rachid**, et tous ceux qui ont eu l'amabilité de nous aider lors de la réalisation de ce travail en particulier.*

A nos chers parents qui nous ont encouragé, soutenu et aidé. On ne vous remerciera jamais assez, de nous avoir accompagnés par votre soutien affectif, moral, matériel et par vos encouragements continuels tout au long de notre parcours, que ce présent travail soit le reflet de notre immense reconnaissance et notre Amour.

Dédicace

Je dédie ce modeste travail,

*A mes chères chéries, une partie de mon âme et de
mon cœur, mes chers parents, A mon frère et ma
sœur pour leur soutien permanent et leurs
encouragements incessants et leur amour qui
augmente ma force*

A toute ma famille et mes amies

A tous ceux qui sont proches de mon cœur

*A tous les professeurs qui ont contribué à ma
formation, en particulier, ceux de la faculté de
Physique.*

Noussaïba

Dédicace

Je dédie ce modeste travail

*A mes chers parents pour leur soutien,
leur patience, leur encouragement durant
mon parcours scolaire.*

*A mes frères et ma sœur ainsi qu'à toute
ma famille.*

*A toutes personnes qui ont contribué à ce
travail je précise mes camarades «S.SOLTANI» et
«I.HAMACHE».*

Sihem

Résumé

La présente étude concerne la mesure de la dose induite par les éléments radioactifs naturels présents dans deux échantillons de phosphate brut et marchand de Djebel Onk (gisement de Bled El Hadba). Il s'agit principalement de l' ^{238}U , du ^{235}Th , de leurs descendants ainsi que du ^{40}K . Les mesures permettent de déduire le risque radiologique que subissent les travailleurs et la population autour de l'usine.

La mesure est réalisée moyennant la technique de la spectrométrie gamma à haute résolution avec le détecteur Ge HP existant au Laboratoire d'Analyse par Activation Neutronique du CRND.

Il a été observé que les activités et les indices de risque pour les deux échantillons brut et marchand de Bled El Hadba sont élevés et dépassent les limites recommandées par les organismes scientifiques de radioprotection OECD, UNCEAR et ICRP.

Comme perspectives, une réalisation de campagnes de mesures approfondies est recommandée. Des mesures de précaution et des moyens de protection sont également proposés.

Abstract

The present study concerns the measurement of the dose induced by the natural radioactive elements present in two samples of raw and merchant phosphate from Djebel Onk (Bled El Hadba deposit). They are mainly ^{238}U , ^{235}Th , their descendants as well as the ^{40}K . The measurements make it possible to deduce the radiological risk suffered by the workers and the populations around the plant are subjected.

The measurement is carried out using the technique of high resolution gamma spectrometry with the Ge HP detector existing at the Neutron Activation Analysis Laboratory of CRND.

It was observed that the activities and the risk indices for the two raw and merchant samples of Bled El Hadba are high and exceed the limits recommended by the scientific radiation protection organization OECD, UNCEAR and ICRP.

As perspectives, a realization of in-depth measurement campaigns is recommended.

Precautionary measures and means of protection are also proposed.

Table des matières

Introduction générale.....	1
Chapitre 1 : Minerai de phosphate	
1. Généralités sur les phosphates naturels.....	3
1.1. Industrie de phosphate.....	3
1.2. Domaine d'utilisation des phosphates.....	4
1.3. Produits marchands et bruts des phosphates.....	4
2. Répartition du phosphore dans l'écorce terrestre.....	5
2.3. Les gisements sédimentaires.....	5
2.4. Les gisements d'origine ignée.....	5
2.5. Les gisements de type guanos.....	5
3. Composition des phosphates.....	6
3.3. Eléments majeurs.....	6
3.4. Eléments en traces.....	7
3.5. Concentration de l'uranium dans les phosphates.....	7
4. Présentation des phosphates de Djebel Onk.....	8
4.3. Situation géographique.....	8
4.4. Les différents gisements de phosphate de Djebel Onk.....	9
5. Processus d'enrichissement du minerai de phosphate.....	9
5.3. Phase de la préparation mécanique.....	9
5.4. Traitement par voie humide.....	10
5.5. Voie sèche (Dépoussiéage).....	11
Chapitre 2 : Radioactivité naturelle et différentes techniques de mesure	
1. Radioactivité naturelle.....	14
2. Types de désintégrations radioactives.....	14
3. Filiation radioactive.....	15
4. Equilibres radioactifs.....	16

4.1. Equilibre séculaire.....	16
4.2. Equilibre de régime.....	17
4.3. Cas non équilibre.....	17
5. Radioactivité naturelle terrestre.....	17
5.1. Uranium.....	17
5.2. Thorium.....	19
5.3. Potassium.....	20
5.4. Radium.....	20
6. Techniques de mesure de la radioactivité de l'environnement.....	20
6.1. Spectrométrie gamma.....	20
6.2. Analyse par activation neutronique.....	21
6.3. Spectrométrie alpha.....	21
7. Doses de rayonnement.....	22

Chapitre 3 : Spectrométrie Gamma par le détecteur Ge HP

1. Mécanisme d'interaction des rayonnements gamma avec la matière.....	23
1.1. Effet photoélectrique.....	23
1.2. Effet Compton.....	24
1.3. Création de paires.....	24
2. Principe de fonctionnement des détecteurs à semi-conducteurs.....	25
3. Présentation de la spectrométrie gamma.....	27
3.1. Présentation du détecteur Ge HP utilisé.....	27
3.2. Présentation de la chaîne de mesure associée.....	28
3.3. Présentation du logiciel gamma vision.....	29
4. Protocole expérimental adopté.....	29
4.1. Réglage de la chaîne électronique.....	30
4.2. Calibration en énergie.....	30
4.3. Calibration en efficacité.....	31

Chapitre 4 : Mesures et analyse des résultats

1. Prélèvement des échantillons.....	34
2. Préparation des échantillons.....	34
3. Mesure de bruit de fond.....	35
4. Limite et seuil de détection	36
5. Analyse qualitative.....	37
6. Analyse quantitative.....	39
6.1. Calcul de l'activité de ^{226}Ra , ^{235}U , ^{232}Th et ^{40}K	40
6.2. Calcul d'erreur.....	40
6.3. Calcul de l'activité équivalente du radium.....	40
6.4. Indice de risque externe et interne.....	41
6.5. Débit de dose absorbée.....	41
6.6. Equivalent de dose effective annuelle (EDEA).....	41
Conclusion générale.....	43
Références bibliographiques.....	45

Liste des tableaux

1.1.	Principaux pays producteurs des phosphates dans le monde.....	3
1.2.	Analyse chimique des phosphates bruts dans différents pays du monde.....	6
1.3.	Analyse minéralogique de diverses roches phosphatées dans différents gisements	6
4.1.	Comptage du bruit de fond pendant 24h.....	36
4.2.	Limites de détection calculées pour les raies des échantillons étudiés.....	37
4.3.	Comptage de l'activité des échantillons pendant 24h.....	37
4.4.	Activité des différents échantillons.....	39
4.5.	Activités des radioéléments ^{226}Ra , ^{234}Th , ^{235}U et ^{40}K mesurés par échantillon.....	40
4.6.	Activités équivalentes en radium et Indices de risque des échantillons.....	42

Liste des figures

1.1.	Répartition mondiale des gisements de phosphate.....	6
1.2.	Mine de 'Djebel Onk ' de Bir El Ater.....	8
1.3.	Schéma de l'usine de traitement du phosphore.....	12
1.4.	Illustration du procédé d'enrichissement du phosphate à SOMIPHOS.....	12
2.1.	Illustration du pouvoir de pénétration des rayonnements ionisants.....	15
2.2.	Equilibre séculaire entre le ^{226}Ra et le ^{222}Rn atteint au bout de 25 jours dans un système étanche et hermétiquement fermé.....	17
2.3.	Chaîne de désintégration de ^{238}U	18
2.4.	Chaîne de désintégration de ^{232}Th	19
2.5.	Exemples de détecteurs utilisés en spectrométrie gamma.....	21
3.1.	Effet photoélectrique.....	23
3.2.	Effet Compton.....	24
3.3.	Création de paires.....	24
3.4.	Schéma de niveaux dans un semi- conducteur.....	25
3.5.	Réalisation d'une jonction P-N à partir de semi-conducteurs P et N.....	25
3.6.	Structure de bande d'énergie d'un semi-conducteur dopé de type N.....	26
3.7.	Caractéristique $I = f(V)$ d'une jonction PN.....	26
3.8.	Principe de fonctionnement d'un détecteur semi-conducteur.....	27
3.9.	Chaîne de spectrométrie gamma au CRND utilisée dans le présent travail.....	27
3.10.	Structure du détecteur germanium haute pureté (Ge HP).....	28
3.11.	Chaîne de mesure dans la spectrométrie gamma.....	29
3.12.	Chaîne d'acquisition de détection	29

3.13	Courbe de calibration en énergie des canaux du spectromètre.....	30
3.14	Définition de la FWHM d'un pic d'absorption.....	31
3.15	Courbe d'efficacité en fonction de l'énergie.....	32
4.1.	Echantillons du minerai de phosphate du gisement de Bled El Hadba.....	34
4.2.	Echantillons conservés dans des Marinellis et scellés par un film de paraffine.....	35
4.3.	Spectre de bruit de fond obtenu pour un comptage de 24 heures.....	35
4.4.	Spectres des différents échantillons mesurés par spectrométrie gamma.....	38

Table des abréviations

AMC	Analyseur Multicanaux
COMENA	Commissariat à l'Energie Atomique
CRND	Centre de Recherche Nucléaire de Draria
EDEA	Équivalent de dose effective annuelle
Ge HP	Germanium Hyper-pur
HT	Haute tension
ICRP	International Commission on Radiological Protection
LD	Limite de détection
La Br3	Lantharum Bromide (Le bromure de lanthane)
LMD/LOD	Limite de Detection / Limite of Detection
MRNs/NORM	Matériaux Radioactifs Naturels / Naturally Occurring Radioactive Materials
NA	Non Available
NC	Non Connu
NaI	Iodure de sodium
PMT	Photomultiplier tube
Ppm	Particules par Millions
SOMIPHOS	Société des Mines de Phosphates
TPL	Tribasic Phosphate of Lime
TSV	Turbo Sélection Ventilée
TENORM	Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Material
UNSCEAR	United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation

Introduction générale

On vit aujourd'hui dans un monde où la demande en matière première s'accroît d'une année à une autre. Le minerai phosphate est actuellement parmi ces matières premières les plus demandées sur le marché international. Ce minerai trouve une vaste utilisation dans l'agriculture pour la préparation des engrais et dans l'industrie chimique comme la production de l'acide phosphorique, et les produits pharmaceutiques.

L'Algérie est parmi les pays disposant d'importantes réserves de phosphate estimées à environ deux milliards de tonnes. Ses ressources se concentrent principalement au niveau du bassin minier de Djebel Onk à Tébessa (Nord Est Algérien). Elles sont exploitées par la Société Minière des Phosphates (SO.MI.PHOS), filiale de Ferphos. Cette dernière est actuellement le seul propriétaire des mines de Djebel Onk Sud (Kef Es Senoun, Djemi Djema), de Djebel Onk Nord, d'Oued Betita et de Bled El Hadba.

Les minerais des phosphates naturels contiennent des éléments radioactifs tels que l'uranium, le thorium et le potassium-40. Bien que ces éléments soient présents à l'état de trace, le risque radiologique d'exposition et de contamination pour les travailleurs, le public et l'environnement est non négligeable. En effet, l'extraction et l'enrichissement du phosphate tend à renforcer l'activité de ces éléments.

Afin d'estimer le risque radiologique et le niveau d'activité des radionucléides présents dans la chaîne de production de phosphate, on réalise des mesures d'activité par spectrométrie gamma.

On utilise un détecteur Ge HP se trouvant au laboratoire d'analyse par activation neutronique du CRND. On considèrera pour cela deux échantillons brut et marchand provenant du gisement de Bled El Hadba.

Ce travail est réparti en quatre chapitres. Le premier chapitre est consacré à la présentation du procédé de traitement de phosphate et à la description du site de traitement de Djebel Onk pour obtenir un produit marchand.

Le deuxième chapitre porte sur la notion de la radioactivité, les principales chaînes radioactives des radioéléments terrestres et les principales techniques de détection des Matériaux Radioactifs Naturels.

Dans le troisième chapitre, nous présentons la spectrométrie gamma moyennant le détecteur Ge HP utilisée pour la mesure de l'activité de nos échantillons avec un rappel du principe de la mesure. Le protocole expérimental adopté est soigneusement reporté dans ce chapitre.

Dans la partie expérimentale de ce mémoire représentée par le chapitre 4, on détaille les étapes d'analyse depuis la préparation des échantillons jusqu'au calcul de dose et d'indice de risque.

Ce mémoire s'achève par une conclusion générale qui résumera la démarche suivie et les principaux résultats obtenus et recommandations inférées.

Minerai de phosphate

1. Généralités sur les phosphates naturels

Dans l'ordre d'abondance, le phosphore se situe au onzième rang des éléments de l'écorce terrestre. C'est un élément trace pour de nombreuses roches puisqu'il ne représente que 0.1% de la lithosphère ; mais il est important par sa fréquence et parce que certaines roches sont essentiellement composées de minéraux phosphates [1]. Les phosphates naturels sont des minéraux formés par l'association d'ions métalliques avec l'ion phosphate (PO₄)⁻³. Ils comprennent plus de 200 espèces minéralogiques et recouvrent un ensemble de minéraux complexes, d'origine diverse selon la composition brute des minerais et des espèces minérales existantes. D'autres minéraux secondaires de certains gisements de phosphate sont également signalés dans les dépôts sédimentaires tels que les phosphates des terres rares et d'uranium [2].

1.1. Industrie des phosphates

Les réserves prouvées et probables, de minerais de phosphate naturels, connues dans le monde sont considérables. Les phosphates naturels constituent une source de matière première absolument indispensable pour l'humanité. Compte tenu de leurs applications potentielles dans de nombreux secteurs industriels : engrais , métallurgie, textile, détergents, pharmacie, chimie et autres, un intérêt particulier est porté à leur exploitation et à leur valorisation.

Tableau 1.1 : Principaux pays producteurs des phosphates dans le monde.

Pays	Principaux gisements	Ressources (Mt)	Production (Mt/an)	
			2000	2001
Maroc	Youssoufia, Khouribga	40000	21.6	22
Algérie	Djebel Onk	2 000	1.1	1.3
Tunisie	Gafsa, Metlaoui	1000	7.34	8.1
Jordanie	El Hassa, Wadi El Abiad	1300	5.5	5.5
USA	Floride, Caroline du Nord	20000	38.8	34.2
Russie	Kola, Karatau	5000	11.1	10.5
Chine	Chine	5000	19.4	20.0
Afrique du Sud	Palabora	2.0	2.8	2.8
Sénégal	Taïba	500	1.8	2.0
Togo	Kpémé	50	1.37	0.8
Syrie	Syrie	450	2.17	2.1
Brésil	Minas Gerais, Araxà	400	4.9	5.0

L'industrie des engrais phosphatés et de l'acide phosphorique absorbe plus de 80 % de la production des concentrés de phosphate [3]. Les pays les plus producteurs de phosphate dans le monde sont le Maroc, les Etats-Unis d'Amérique, la Russie et la Chine, le **Tableau1.1** [3]. Cependant, cette filière impose des exigences de qualité à ces concentrés. On rencontre ainsi un grand nombre d'impuretés gênantes ou même nuisibles aussi bien en éléments majeurs (dolomite, calcite, quartz, gypse, ...) qu'en éléments traces (Cd, Pb, Hg, Zn, U, ...), considérés toxiques en dépassant le seuil normal [2,4].

1.2. Domaine d'utilisation des phosphates

L'apport du phosphate dans les divers domaines d'utilisation est représenté comme suit :

- Dans les engrais, il apporte ses qualités fertilisantes particulières [2,5].
- Dans l'alimentation, il est employé pour les propriétés spécifiques du P_2O_5 dans le métabolisme.
- Dans les détergents, on l'utilise pour les propriétés de séquestration de P_2O_5 .
- Dans les textiles, les plastiques et le traitement du bois, le P_2O_5 apporte des qualités de résistance à l'inflammation.
- En métallurgie, les dérivés du phosphore sont utilisés pour le nettoyage, la protection et le revêtement anticorrosion.
- En chimie et dans l'industrie du pétrole, le phosphore permet la fabrication de dérivés intermédiaires particulièrement actifs (sulfures, chlorures, oxydes, etc...) [2].
- Le domaine médical compte de nouvelles applications de pointe telles que la fabrication des biomatériaux. La biocéramique utilise le phosphate comme matériau pour des os de remplacement, des implants dentaires ainsi une couverture des parties métalliques des prothèses osseuses [6].

Le pouvoir de dispersion des phosphates a conduit à leur utilisation dans de multiples industries pour séparer ou combiner des liquides et des solides finement dispersés. Il existe d'autres applications secondaires qui fonctionnent dans de très nombreux secteurs industriels, notamment : cimenterie, pigments, allumettes, etc [2].

1.3. Produits marchands et bruts des phosphates

L'extraction minière se fait à partir des gisements et produit un phosphate brut qui n'est utilisé directement que comme engrais phosphaté et sous certaines conditions (solubilité, porosité, acidité des sols, etc...). Des tentatives d'utilisation directe des phosphates naturels ont été effectuées dans les années 1960 dans certains pays, le Brésil, l'Inde et surtout la Chine mais les résultats ont été décevants car à leur état brut les phosphates sont durs.

Après l'extraction, le phosphate passe par un cycle de traitement pour aboutir à la fin à un produit marchand. Ce produit contrarie dans l'industrie des engrais phosphatés et de l'acide phosphorique impose des exigences de qualité à ces concentrés qui sont en relation avec la nature des impuretés contenues dans le minerai. Les paramètres de qualité sont ainsi liés directement aux teneurs limites en éléments majeurs et traces des produits marchands (P_2O_5 ; CaO ; MgO ; Fe_2O_3 ; Al_2O_3 ; Na_2O ; K_2O ; SiO_2 ; Cl et matière organique) [3].

2. Répartition du phosphore dans l'écorce terrestre

La production de minerais de phosphate est assurée à plus de 80% par des gisements sédimentaires, mais il existe également des gisements d'origine ignée et des gisements de type 'guano'. Des réserves importantes de phosphates ont été également mises en évidence sur le plateau continental des mers actuelles, mais elles n'ont pas pu donner lieu jusqu'à présent à des exploitations économiques ; cependant la forte augmentation récente du prix des phosphates pourrait conduire à une modification de cette vision [1].

2.1. Les gisements sédimentaires

Les phosphates sédimentaires présentent des aspects et des teintes très variés qui les rendent souvent difficiles à reconnaître macroscopiquement. Ils se présentent sous forme de nodules, de grains de taille variée, de coprolithe, d'oolithes, de débris de dents ou d'os, de débris de fossiles divers plus ou moins complètement créés du phosphate de Calcium. Ces gisements sont plus importants en nombre et en volume. Leur teneur est souvent supérieure à 20 % et même à 30 % en P_2O_5 . Les gisements de **Djebel Onk** font partie des gisements de ce type [1].

2.2. Les gisements d'origine ignée

Ces gisements se trouvent dans des roches magmatiques et des roches cristallines. Ces gisements sont les moins nombreux et fournissent environ 12 % de la production mondiale des concentrés. Ils sont assez largement distribués en Amérique du nord (Canada), en Amérique du Sud (Brésil), en Afrique orientale, en Inde et en Russie. Les plus importants sont ceux de la péninsule de Kola en URSS où l'apatite est associée à des syénites néphéliniques. Le gisement de PALABORA en Afrique du Sud contenant des réserves évaluées à 1.4 milliard de tonnes de concentrés à 35.7% de P_2O_5 [1].

2.3. Les gisements de type guanos

Ces gisements sont issus de la réaction de déjections d'oiseaux et de chauve-souris sur les roches réceptrices. Ils ont une importance économique loin d'être négligeable. L'Ile Christmas présente des réserves supérieures à 200 millions de tonne d'un minerai titrant en place 50 à 80% TPL (21.8 à 36.6% P_2O_5). Sa production a atteint, en 1973, 1.493 millions de tonnes de minerai à haute teneur, celles de

l'île Nauru 2.323 millions de tonnes et les autres îles du pacifique totalisent 742 000 tonnes [7]. Les gisements issus du guano n'ont actuellement d'intérêt que dans la mesure où la roche réceptrice est calcaire ; dans les autres cas les minéraux formés sont des phosphates de fer ou d'alumine peu exploitables actuellement [2].



Figure 1.1 : Répartition mondiale des gisements de phosphates.

3. Composition des phosphates

Dans les phosphates, on distingue des éléments majeurs et des éléments en traces [4].

3.1. Éléments majeurs

Les éléments majeurs sont des oxydes, le fluor et le chlore. Le **tableau 1.2** montre les différentes compositions chimiques de phosphate brut dans différents gisements dans le monde [8]. L'analyse minéralogique de produit marchands donne une teneur en P_2O_5 ou en terme de pourcentage de phosphate tricalcique (TPL) qui varie de 63 à 65 %, qui est exprimé en Algérie par la relation suivante : $TPL = \% P_2O_5 \times 2.185$.

Tableau 1.2 : Analyse chimique des phosphates bruts dans différents pays du monde.

	Les compositions chimiques en %					
	Russie CER	Afrique du Sud Palabora	Maroc Khouribga	USA Florida	Sénégal Taïba	Algérie Djebel Onk
P_2O_5	38.9	39.9	33.4	34.3	36.7	29.80
CaO	50.5	54.4	50.6	49.8	50.0	49.50
Na_2O	0.4	0.1	0.7	0.5	0.3	1.10
MgO	0.1	0.75	0.3	0.3	0.1	0.85
Al_2O_3	0.4	0.05	0.4	1.1	1.1	0.38
SiO_2	1.1	0.4	1.9	3.7	5.0	2.30
K_2O	0.5	0.1	0.1	0.1	0.1	0.09
Fe_2O_3	0.3	0.14	0.2	1.1	0.9	0.33
CO_2	0.2	1.61	4.5	3.1	1.8	6.40
SO_3	0.1	0.2	1.6	0.1	NR	2.30
F	3.3	2.49	4.0	3.9	3.7	3.55
Cl	NR	NR	0.1	NR	NR	250 Ppm
Total	95.9	100.34	98.1	98.7	100.1	99.6

3.2. Eléments en traces

Les éléments de traces ou oligoéléments sont associés soit avec la matière organique ou par l'intégration dans le réseau de l'apatite [9]. Les concentrations de Ag, As, Mo, Ni, V, Zn, Cr, Cu, Sb, Se et Cd sont ainsi attribuées à la matière organique, alors que celles de Sr, U, Th et des terres rares sont attribuées à l'apatite. **Le tableau 1.3** montre leur composition à travers le monde avec une analyse minéralogique de produits marchands de **DJBEL ONK** 63 à 65 % TPL éléments de traces (Laboratoire SOMIPHO) [8].

Tableau 1.3 : Analyse minéralogique de diverses roches phosphatées dans différents gisements.

Les Compositions chimiques en %						
	Russie CER	Afrique du Sud Palabora	Maroc Khouribga	USA Florida	Sénégal Taïba	Algérie Djebel Onk
As	10	13	13	11	13.8	7.5
Cd	1.2	1.3	15	9	LDD	25
Cr	19	1	200	60	LDD	160 Ppm
Cu	37	NR	40	13	76	22
Hg	33	0.1	0.1	0.02	NR	0.5
Ni	2	NR	35	28	15	15
Pb	NR	4397	10	17	20	3.8
Sr	29000	NR	1000	NR	4338	15000 Ppm
U	11	6	185	200	NR	45
Zn	20	NR	200-400	70	LDD	160
The	NR	NR	NR	NR	NR	27
Ce	NR	NR	NR	NR	NR	280
Be	NR	NR	NR	NR	NR	17
Mn	NR	NR	NR	NR	NR	12
Se	NR	NR	NR	NR	NR	37
V	NR	NR	NR	NR	NR	43
Te	NR	NR	NR	NR	NR	8.1

NR : Non reporté, **Ppm** : Particules par million, **LDD** : Limite de détection.

3.3. Concentration de l'uranium dans les phosphates

L'uranium est présent la plupart du temps dans les phosphates sédimentaires à de faibles concentrations quelle que soit leur localisation. L'augmentation de sa teneur se produit principalement par lessivage superficiel ou souterrain. Ce phénomène peut naturellement provoquer des migrations différentielles des divers radio-isotopes de la famille de l'uranium suivant leurs propriétés radiochimiques et géochimiques différentes. Pour le cas de Djebel Onk, l'uranium a été découvert dans les phosphates en 1934. Son dosage a été fait entre 1985 et 1987 par Entreprise de Recherches et

d'Exploitations Minières (EREM). Ce dosage est souvent inférieur à 100 ppm et dépasse rarement 200 ppm [11].

4. Présentation des phosphates de Djebel Onk

L'Algérie recèle un potentiel de réserve important en phosphate. Les principales concentrations phosphatées du pays sont représentées par les deux grands domaines de sédimentation phosphatée, d'âge Eocène : les Monts du Hodna au Nord, et les Monts des Nememchas à Tébessa au Sud-est Algérien [2]. Le gisement de Djebel Onk a été découvert l'année 1906 dans le sud-est Constantinois. En 1989, l'entreprise FERPHOS expose ses techniques pour l'étude de développement des phosphates de Djebel Onk [12]. En avril 1992, un contrat a été signé entre l'entreprise FERPHOS et BRGM/SOFREMINE pour regrouper les éléments techniques des gisements de phosphate de Djebel Onk [12].



Figure 1.2 : Mine de 'Djebel Onk ' de Bir El Ater.

4.1. Situation géographique

La région de Djebel Onk est située au sud-est de l'Algérie, à 100 Km au sud de la wilaya de Tébessa et à 20 Km de la frontière Algéro-Tunisienne [2,13]. Cette région constitue la limite géographique naturelle entre les hauts plateaux constantinois et le domaine saharien. Le massif de Djebel Onk forme un ensemble calcaire de 20 Km de longueur qui culmine à 1198 m d'altitude au Djebel Tarfaya. Ce massif constitue l'extrémité orientale des Monts des Nememchas qui se prolongent vers l'Est, le massif des Aurès. Les altitudes les plus basses au pied de Djebel Onk sont d'environ 635 m [2,12].

4.2. Les différents gisements de phosphate de Djebel Onk

La région de Djebel Onk présente une série de sept gisements qui sont soumis à l'expertise :

- **Le gisement de Djemi Djema** : Exploité depuis 1965 par l'EN-Ferphos, il 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.
- **Les gisements de Djemi Djema Est et Ouest** : Situés à 5 km de sud-ouest de la ville de Bir El Ater. Leur couche de phosphate a une épaisseur de 25 à 28 m et est recouverte de 30 à 40 m de stérile, ce qui la rend plus propice à l'exploitation.
- **Le gisement de Kef Es Senoun** : Est situé à 2 Km de l'ouest de Djemi Djema et à 1 Km de l'extrémité occidentale de la carrière du gisement de Djemi Djema ouest.
- **Le gisement de Djebel Onk nord** : Est situé à 6 Km au nord du centre minier de Djemi Djema. Il présente les meilleures ressources en phosphate dans tout le bassin phosphaté de Djebel Onk.
- **Le gisement d'Oued Betita** : Est le plus éloigné de tous les gisements étudiés. Il est situé à 45 km du sud et du centre minier du Djebel Djemi Djema et n'est distant que de 2 à 4 km du gîte Midès en Tunisie.
- **Le gîte de Bled El Hadba** : Situé à 14 km au sud-est des gisements du flanc de Djebel Onk (Djemi Djema et Kef Es Senoun) et à 6 km de la frontière Algéro-Tunisienne [2,12,14].

Le phosphate qui fait l'objet de ce travail provient du **gisement Bled El Hadba** actuellement exploité en carrière par l'entreprise SOMIPHOS.

5. Processus d'enrichissement du minerai de phosphate

Le phosphate brut provenant de la carrière avec une dimension d'environ 1000 à 1200 mm subit un traitement mécanique pour réduire les dimensions des fragments de la roche exploitée. La méthode d'exploitation consiste à la réalisation d'une succession des travaux miniers, afin d'assurer la découverte et l'extraction en qualité et quantité planifiée dans les meilleures conditions. L'enrichissement des minerais de phosphate, qui permet d'augmenter leur concentration en phosphate (teneur en P_2O_5) par élimination des minéraux de la gangue, est réalisé essentiellement par des opérations simples. Le minerai de phosphate au niveau de Djebel Onk traverse deux étapes d'enrichissement pour l'obtention des produits concentrés (voie sèche et voie humide) subissant au préalable un traitement mécanique.

5.1. Phase de la préparation mécanique

La préparation mécanique a pour objectif de réduire les dimensions des blocs des minerais et de libérer la substance utile de la gangue. Les dimensions des blocs sont réduites de 1200 mm jusqu'à 15 mm. Il comporte les trois opérations suivantes : concassage, broyage et criblage [1].

- **Le concassage** : il consiste à réduire les dimensions des blocs de minerai jusqu'à une granulométrie de l'ordre de quelques centimètres ; c'est un processus sec, il se produit par écrasement et fragmentation des morceaux du minerai. On distingue trois stades de concassage : Concassage grossier de 400 à 150 mm, intermédiaire de 150 à 20 mm, et fin de 20 à 10 mm.
- **b. Le broyage** : c'est une opération de réduction des morceaux concassés à une dimension plus fine (< 1 mm) afin de passer à des opérations d'enrichissement ultérieures. Le broyeur est constitué d'une chambre de résolution qui contient le produit à fragmenter et des corps broyant, la rotation provoque la fragmentation des particules par choc et cisaillement. Les broyeurs permettent d'enrichir en P_2O_5 les fractions granulométriques moyennes les plus courantes (100 μm – 1000 μm).
- **c. Le criblage** : c'est une opération de classement dimensionnel des grains, qui s'effectue par leur présentation sur des surfaces perforées qui laissent passer les grains de dimensions inférieures aux dimensions de la perforation, tandis que les grains de dimensions supérieures sont retenus et évacués séparément [2].

5.2. Traitement par voie humide

Le traitement par voie humide est composé de quatre ateliers : débouillage, calcination, lavage et séchage.

- **Le débouillage** : Ces techniques correspondent à un lavage énergique en (log-washers) et trommels débouilleurs pourvus de rampes inférieures d'adduction d'eau sous pression et permettent de se débarrasser des fines argileuses et d'avoir des éléments phosphatés bien nettoyés [11]. On distingue dans cette étape les opérations suivantes : une mise en pulpe, criblage humide (grilles courbes), classification, hydro-cyclonage et une filtration [5].
- **La calcination** : la calcination consiste à traiter le minerai débouillé par voie thermique à une température dans un intervalle de température compris généralement entre 700 et 1000 °C et réduire ainsi les proportions de CaO et MgO par rapport au P_2O_5 . elle doit être poursuivie d'une deuxième étape qui consiste à hydrater les oxydes de Ca et Mg pour pouvoir ensuite les éliminer [11, 2]. De plus dans certains cas, un traitement préalable à la calcination est nécessaire pour éliminer certaines impuretés. L'enrichissement par calcination comprend trois étapes : le pré traitement, la calcination et le post traitement

L'usine de Djebel Onk utilise trois calcinateurs à lit fluidisé (DORR-OLIVER) de 50 tonnes/heure par unité comportant trois compartiments destinés au séchage-préchauffage, à la calcination et au refroidissement [11,12].

- **Le lavage** : le post-traitement par lavage vise essentiellement à éliminer la chaux et la magnésie libérées par la décomposition thermique des carbonates. Le brusque refroidissement du minerai

calciné provoque également une désagrégation permettant la séparation des éléments non séparés après dissolution.

- **Le séchage** : le minerai lavé est finalement séché dans des fours rotatifs (130 T/h) dans le but de réduire l'humidité du concentré jusqu'à 0,5 % [11,12].

5.3. Voie sèche (Dépoussiérage)

Cette opération est un procédé physico-mécanique d'enrichissement du minerai phosphate pour le ramener à la qualité commerciale titrant 65 à 68 % en TPL avec des granulométries comprises entre 0.8 mm et 0.08 mm [15].

- **Séchage à lit fluidisé** : Le but de cette opération est de diminuer le taux d'humidité de produit jusqu'à 1 % et d'éliminer aussi une partie des solides les plus fins en les entraînant avec les gaz d'utilisation. Il comporte deux fours sécheurs, ils sont divisés en deux compartiments : combustion et dilution avec séchage par utilisation.
- **Criblage à 2 mm** : Cette opération consiste à éliminer le produit dont la dimension est supérieure à 2 mm composé principalement du calcaire, les moins de 2 mm sont admis et acheminés vers Les broyeurs (rendement en poids 88 %).
- **Broyage à attrition** : Cette opération s'effectue à libérer une partie de l'exogangue aux grains de phosphate et permettre un meilleur enrichissement par séparation granulométrique par des broyeurs à attrition, équipés d'un rotor sur lequel sont portés des marteaux et une chambre de Broyeur.
- **Sélection par une turbo sélection ventilée (TSV)** : Cette opération a pour but l'enrichissement du produit en éliminant les fines particules de moins de 0.08 mm à l'aide des ventilateurs.
- **Criblage à 0.8 mm** : cette opération consiste à éliminer les grains de phosphate, Supérieur à 0.8 mm.

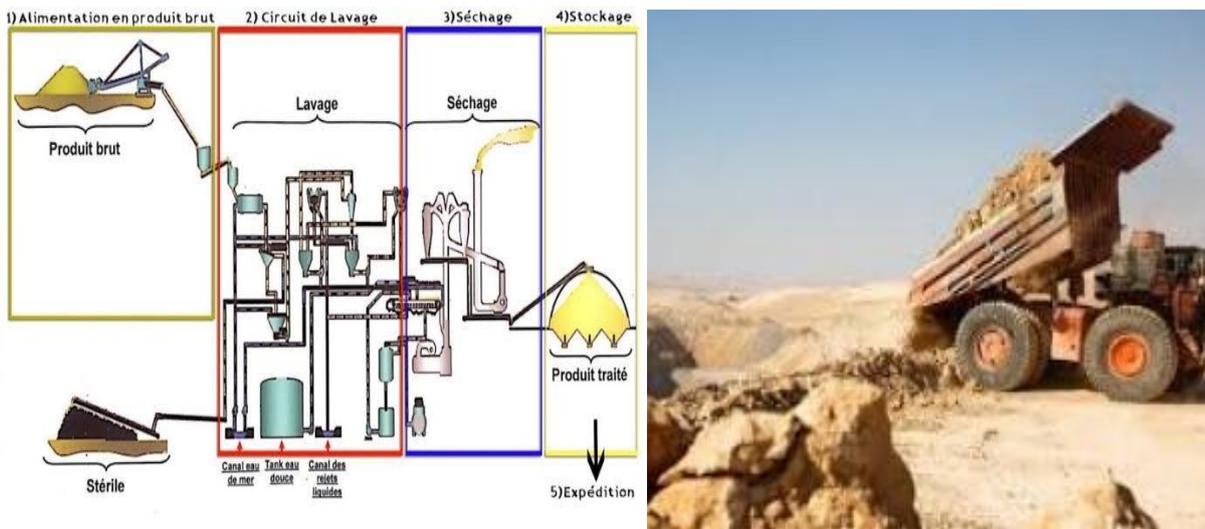


Figure 1.3 : Schéma de l'usine de traitement de phosphate.

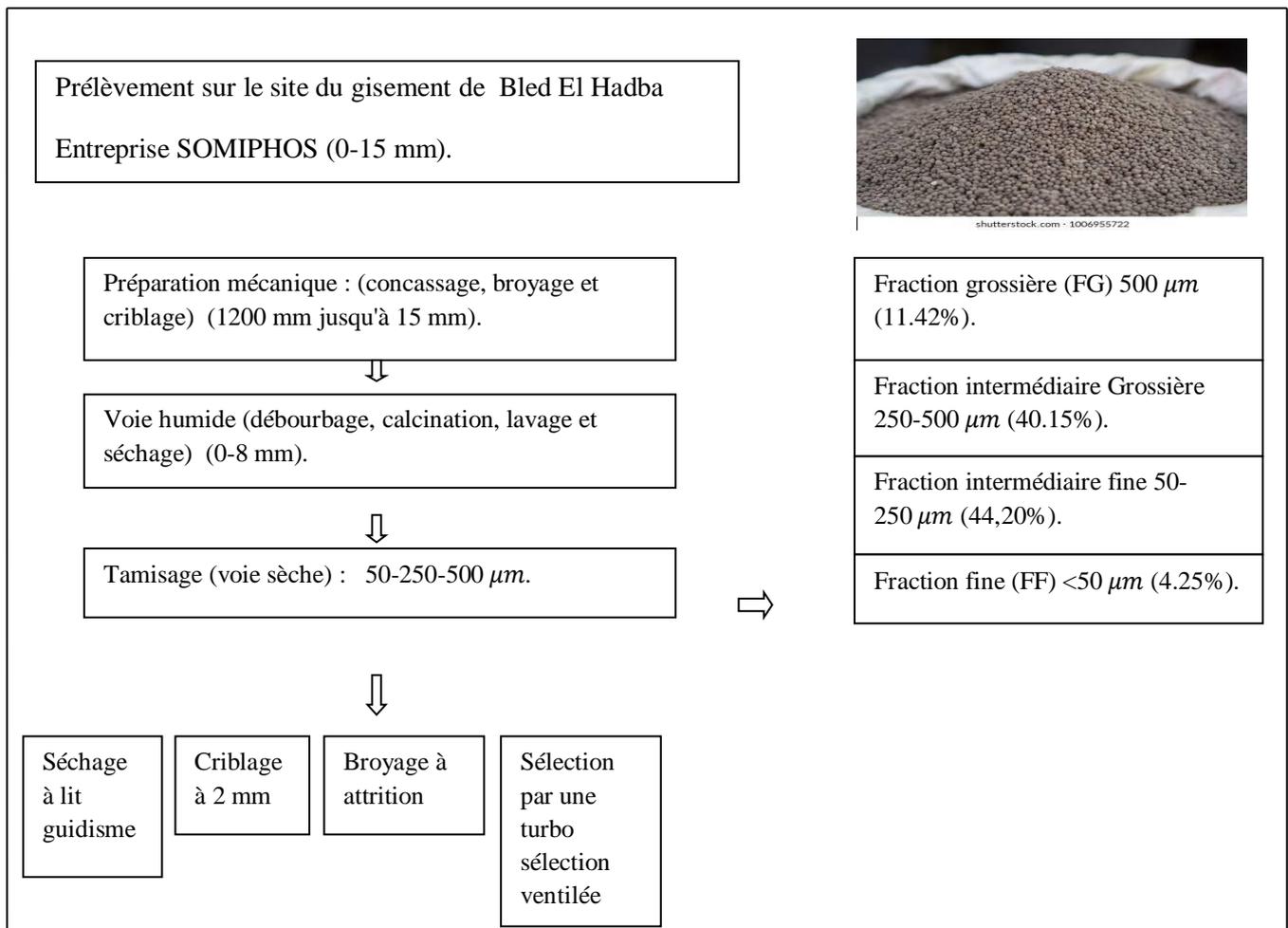


Figure 1.4 : Illustration du procédé d'enrichissement du phosphate à SOMIPHOS.

Conclusion

Notre étude, porte sur le phosphate de Djebel Onk dont le potentiel de réserve est considérable. Ce chapitre est consacré à la présentation bibliographique des phosphates. Il comporte des généralités, les appréciations géologiques et minières des différents gisements de phosphate de Djebel Onk et leur procédé d'enrichissement.

On s'est intéressé dans ce dernier à la concentration des éléments en traces présents dans le phosphate brut et marchand. Particulièrement, la présence de ces radionucléides affecte la qualité des phosphates dans l'industrie.

Radioactivité naturelle et différentes techniques de mesure

1. Radioactivité naturelle

La radioactivité est la propriété qu'ont certains noyaux atomiques de se transformer spontanément en noyaux ayant d'autres propriétés. Cette transformation est accompagnée d'émission de rayonnements [16]. On dit que les éléments constitués d'atomes ayant des noyaux instables sont des éléments radioactifs ou radioéléments ou encore radionucléides. De nombreux radionucléides sont présents sur notre planète, notamment dans l'atmosphère, dans les matériaux et dans la croûte terrestre. Ces derniers présents au moment de formation de la terre sont appelé «primordiaux» qui comprennent principalement la série de l'uranium et le thorium ainsi que le potassium-40.

2. Types de désintégrations radioactives

➤ Radioactivité α

Le noyau père se désintègre en un noyau fils en émettant une particule α (noyau d'hélium). Le rayonnement α émis lors de cette désintégration est très peu pénétrant, une feuille de papier suffit de l'arrêter.



➤ Radioactivité β^+

Le noyau père se désintègre en un noyau fils en émettant une particule β^+ (positon) et un neutrino.



➤ Radioactivité β^-

Le noyau père se désintègre en un noyau fils en émettant une particule β^- (électron) et un antineutrino.



Les rayonnements β émis lors des désintégrations ont un parcours de quelques mètres dans l'air et sont arrêtés par quelques millimètres de métal.

➤ Emission gamma

Généralement, les noyaux produits par radioactivité alpha ou béta sont dans un état d'énergie excité. Ainsi, ces désintégrations sont souvent accompagnées par des émissions de rayonnements gamma consécutives à la désexcitation.



Les rayonnements gamma sont très pénétrants, ils nécessitent plusieurs dizaines de centimètres de plomb ou de mètres de béton pour être arrêtés, suivant leurs énergies, (figure 2.1).

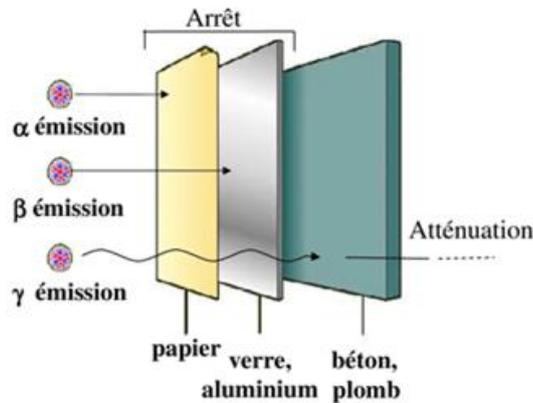


Figure 2.1 : Illustration du pouvoir de pénétration des rayonnements ionisants.

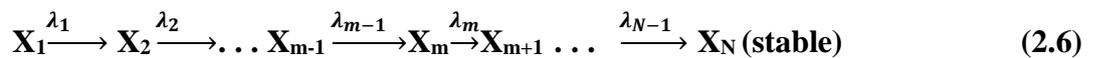
➤ **Capture électronique**

C'est un autre mode de désintégration que subissent les noyaux ayant un excès de protons. Le noyau arrache l'un des électrons les plus proches du cortège électronique de l'atome et l'intègre d'où le nom donné à ce processus, la capture électronique. La conséquence de la capture, selon la loi de conservation, est qu'il y a une transmutation de l'atome puisqu'un proton, en absorbant l'électron intrus devient un neutron avec émission d'un neutrino [17].



3. Filiation radioactive

Il s'agit d'une cascade de désintégration que subit un isotope radioactif lors de son retour vers des composés stables. De manière générique, celle-ci s'écrit :



La variation de nombre $dN_i(t)$ de noyaux i pendant un intervalle de temps dt est donnée par le système d'équations différentielles de **Bateman** [18]. Le système permet de calculer l'évolution en fonction de temps de l'activité d'un élément initial donné :

$$\frac{dN_i}{dt} = \lambda_{i-1}N_{i-1} - \lambda_iN_i \quad (i = 2, m) \tag{2.7}$$

Avec ${}^0_1N(0) = {}^0_1N \neq 0$ et $N_i(0) = 0$ si $i > 1$

La solution générale pour l'équation donne la concentration du $m^{ième}$ noyau en fonction de temps :

$$N_m(t) = \frac{N_1^0}{\lambda_m} \sum_{i=1}^m C_i^m e^{-\lambda_i t} \tag{2.8}$$

Où les coefficients C_i^m sont donnés par : $C_i^m = \prod_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^m \frac{\lambda_j}{(\lambda_j - \lambda_i)}$ et $m < N$

Si $m = 2$, la situation devient un problème à deux corps (noyau père₁ et son fils₂). La variation du nombre dN_2 de noyaux fils₂, pendant un intervalle de temps dt , est donnée par l'équation:

$$dN_2(t) = \lambda_1 N_1 dt - \lambda_2 N_2 dt \quad (2.9)$$

Et sa solution est donnée par l'équation :

$$N_2(t) = N_0^1 \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (2.10)$$

On aboutit donc à l'expression de l'activité $A_2(t)$:

$$A_2(t) = N_0^1 \frac{\lambda_2 \lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (2.11)$$

Avec $A_2(t) = \lambda_2 N_2(t)$.

4. Equilibres radioactifs

Les radio-isotopes ^{238}U et ^{232}Th existants dans l'environnement sont intimement mélangés avec leurs descendants respectifs. Selon leurs constantes de désintégration, les descendants peuvent être en équilibre ou pas avec le noyau père. A titre d'exemple, la présence du radon (gaz) dans les trois familles radioactives naturelles à savoir ^{235}U , ^{238}U et ^{232}Th , affecte l'équilibre de ces descendants. En effet, il peut altérer l'activité et la dose émanant d'un échantillon. Les radio-isotopes ^{219}Rn (actinon émanant du ^{223}Ra) et ^{220}Rn (émanant du ^{224}Ra) ayant des périodes respectives de 3.96 s et 55.8 s, même si le radon s'échappe, l'équilibre est atteint de nouveau dans quelques minutes, contrairement au ^{222}Rn (émanant du ^{226}Ra) dont la période est de 3.8 jours. Dans ce cas, l'équilibre entre l' ^{238}U et les radionucléides post ^{222}Rn se retrouve dans environ 7 périodes de ^{222}Ra [19]. On distingue trois types d'équilibre :

4.1. Equilibre Séculaire

A chaque instant, il se forme autant de noyaux descendants qu'il ne s'en désintègre. Toutes les activités sont pratiquement constantes et égales à celle du noyau ancêtre, figure 2.2. L'équilibre séculaire existe lorsque la demi-vie du radionucléide parent T_1 est nettement plus longue que celle de son descendant T_2 [17]. En effet d'après l'équation (2.10) et lorsque $\lambda_1 \ll \lambda_2$, on obtient :

$$\lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_1 \quad (2.12)$$

$$D'où : \quad A_2 = A_1 \quad (2.13)$$

Dans ce cas, l'activité du nucléide parent reste pratiquement inchangée, puis l'activité du descendant augmente progressivement et atteint la même activité du parent au bout de 6 à 7 périodes de fils.

Dans notre étude, cette situation d'équilibre séculaire est intéressante car elle permet de déduire l'activité du noyau Uranium (noyau père) à partir de celle du Radon (noyau descendant). Cette méthode est appelée méthode indirecte.

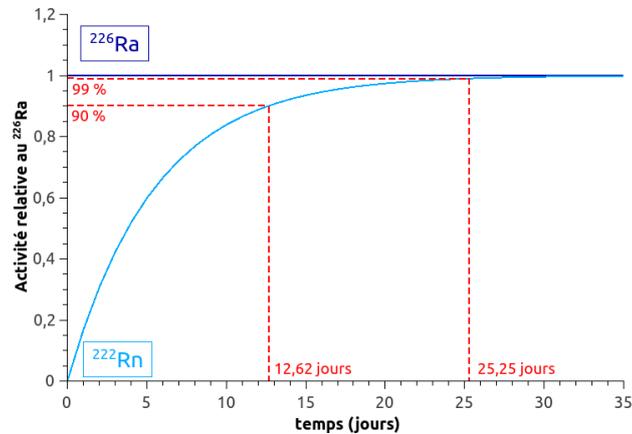


Figure 2.2 : Equilibre séculaire entre le ^{226}Ra et le ^{222}Rn atteint au bout de 25 jours dans un système étanche et hermétiquement fermé.

4.2. Equilibre de régime

Cet équilibre est à considérer lorsque la période du noyau père est légèrement supérieure à celle du noyau fils. Les activités des deux nucléides évoluent en restant dans un rapport constant [20]. L'activité du noyau fils est liée à celle du père par la relation suivante :

$$\frac{A_2}{A_1} \approx \frac{\lambda_2}{(\lambda_2 - \lambda_1)} \quad (2.14)$$

4.3. Cas non équilibre

Lorsque la demi-vie T_1 du nucléide parent est beaucoup plus courte que celle du descendant T_2 , ou bien $\lambda_2 \gg \lambda_1$, l'équation (2.11) sera simplifiée sous l'expression suivante :

$$A_2(t) \cong N_0^1 \lambda_2 e^{-\lambda_2 t} \quad (2.15)$$

5. Radioactivité naturelle terrestre

Notre étude propose de mesurer les concentrations de phosphate en ^{238}U , ^{232}Th , ^{226}Ra et en ^{40}K . Dans ce contexte on va présenter quelques généralités sur l'uranium, le thorium, le potassium et le radium (leurs présences dans l'environnement, leurs toxicités, leurs filiations si elles existent).

5.1. Uranium

L'uranium est présent dans les roches, les sols, et les eaux dans la croûte terrestre où sa teneur moyenne varie de 2 à 4 $\mu\text{g/g}$ [21]. La concentration naturelle d'uranium dans les roches dépend de la

géochimie du milieu et varie amplement d'un milieu naturel à l'autre. Les roches phosphatées en contiennent le plus, soit de 60 à 200 ppm pour la plupart. Cependant, l'eau de mer contient des concentrations moyennes de 0.0033 ppm et l'eau douce en contient entre 0.00001 et 0.01 ppm et l'eau souterraine en renferme moins de 0.001 ppm [22].

L'uranium est un élément neurotoxique et hémotoxique avec un plus grand risque de toxicité chimique que toxicité radiologique. La toxicité radiologique limitée est principalement due à sa grande demi-vie physique de 4.5×10^9 années [23]. Les risques pour la santé associés à ce radionucléide proviennent de sa capacité à s'accumuler dans les tissus humains. L'uranium est un émetteur alpha et incapables de pénétrer la couche externe de la peau. Des particules alpha sont susceptibles de provoquer des dommages cellulaires suite à contamination interne.

La figure 2.3 montre que l' ^{238}U possède une chaîne de désintégration de 14 radioéléments dont le dernier, le ^{206}Pb , est l'élément stable. Parmi les éléments de cette chaîne, l' ^{238}U possède la plus puissante toxicité chimique due à sa très longue demi-vie et à son activité spécifique faible [23].

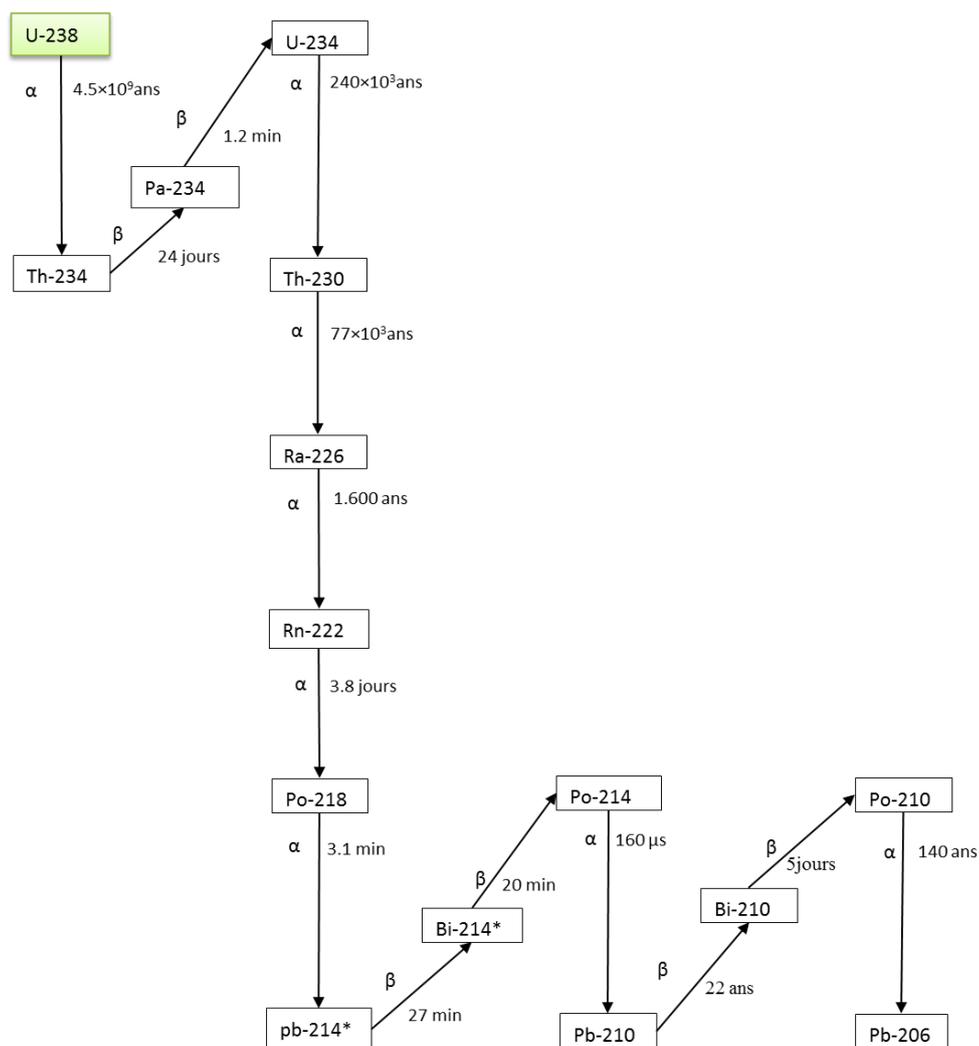


Figure 2.3 : Chaîne de désintégration de ^{238}U .

5.2. Thorium

Il présente 13 radio-isotopes (de masses atomiques allant de 212 à 236) où le ^{232}Th est la substance mère de chaîne du thorium, avec le Plomb de masse 208 comme produit stable final, (figure 2.4).

Le thorium est 3 à 4 fois plus abondant que l'uranium dans la croûte terrestre. Sa teneur moyenne est de 9 à 12 g.t⁻¹sols. Plusieurs activités industrielles augmentent la teneur en thorium telle que l'extraction du phosphate et les activités agricoles par l'utilisation des engrais phosphatés contenant typiquement entre 5.9×10^{-6} et 6.6×10^{-5} Bq.kg⁻¹ en thorium [24].

Il présente une double toxicité : chimique et radiologique. Du point de vue chimique, il s'agit d'un métal lourd et du point de vue radiologique, sa toxicité est supérieure à celle de l'uranium. Le ^{232}Th est classé dans le groupe 2 de forte radio-toxicité dans la classification radio toxicologique des radio-nucléides [20].

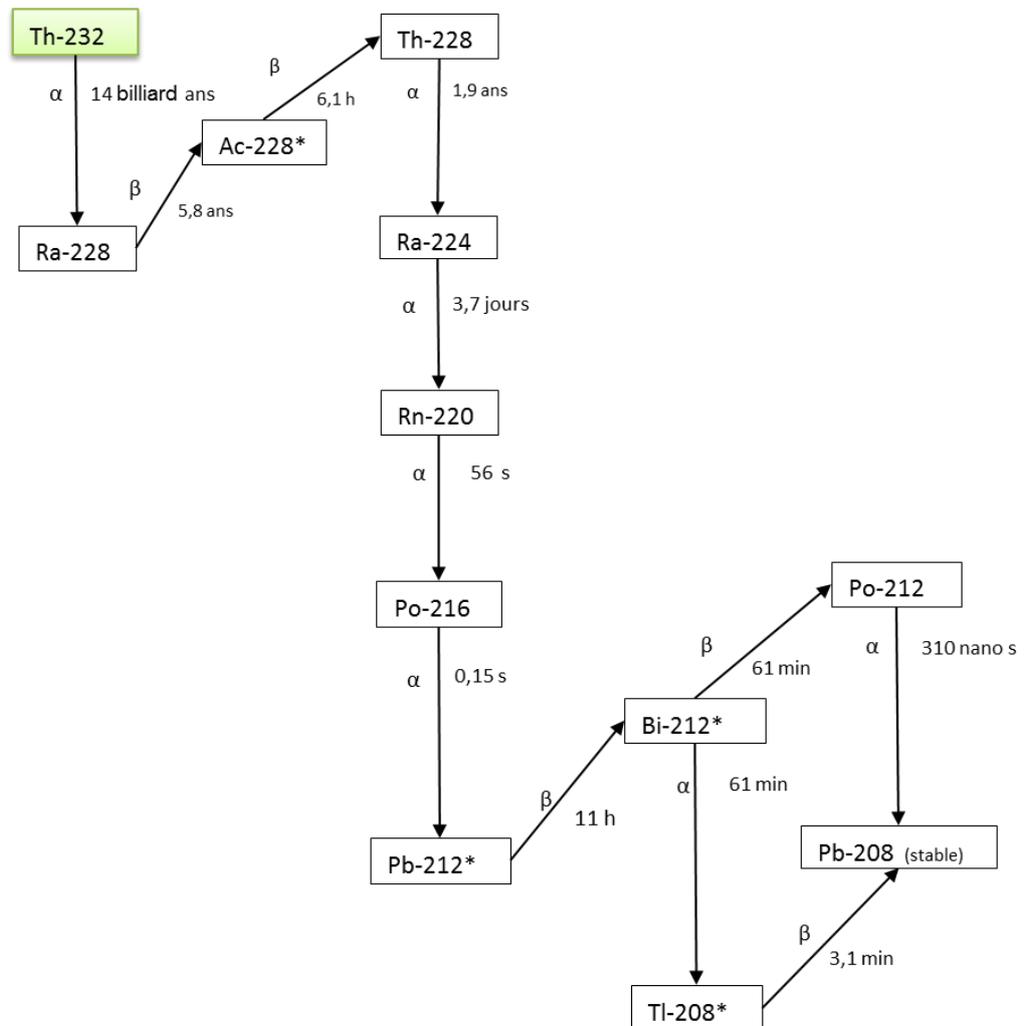


Figure 2.4 : Chaîne de désintégration de ^{232}Th .

5.3. Le Potassium

La croûte terrestre contient en moyenne 2000 mg.kg^{-1} de potassium. Le potassium-40, qui se trouve à l'état de traces dans le potassium naturel, est responsable de plus de la moitié de la radioactivité du corps humain. Le potassium peut avoir des effets indésirables durant la respiration. L'inhalation de la poussière contenant du potassium peut irriter les yeux, le nez et la gorge. Des expositions élevées au potassium-40 peuvent causer une accumulation de liquide dans les poumons pouvant causer la mort.

5.4. Radium

Le radium à l'état pur n'existe pas; il est toujours à l'équilibre avec ses descendants. Les concentrations du ^{226}Ra sont très faibles dans l'environnement, mais leur pouvoir radioactif est élevé. Le comportement du radium est similaire à celui du calcium, ce qui explique sa capacité à s'introduire dans les os des mammifères, pour s'y accumuler et générer l'apparition de cancers. Dans le contexte minier, le radium se dissout dans un environnement acide. C'est pourquoi il peut contaminer les cours d'eau. En effet, l'augmentation du pH de l'eau favorise la solubilité et la mobilité des sels de radium [22].

6. Techniques de mesure de la radioactivité de l'environnement

La protection des populations et de l'environnement vis-à-vis des rayonnements ionisants repose en premier lieu sur une surveillance de la radioactivité de l'environnement. Le moyen principal de la surveillance est la mesure des niveaux de radioactivité. Nous citons ci-dessous quelques techniques les plus utilisées.

6.1. Spectrométrie gamma

La spectrométrie gamma se base sur la détection des rayonnements gamma émis spontanément de l'objet analysé durant le retour de ses noyaux excités à leur état fondamental. Les radionucléides peuvent être des émetteurs gamma mono énergétiques (émission d'un photon à une énergie) ou des multi émetteurs gamma (émission de plusieurs photons à différentes énergies). Les énergies et les probabilités d'émission de chaque radionucléide sont connues et compilées dans des "bases de données nucléaires". En comparant les énergies des photons détectés aux données de ces bases, on identifie les radionucléides présents dans l'objet. De plus, la quantité des photons détectés est caractéristique de la quantité de chaque radionucléide présent dans le déchet. La spectrométrie gamma permet donc d'identifier les différents radionucléides et de quantifier leur activité [20]. Cette technique utilise des détecteurs semi-conducteurs (Ge HP) et à scintillation (NaI et LaBr3), (figure 2.5).



Figure 2.5 : Exemples de détecteurs utilisés en spectrométrie gamma.

6.2. Analyse par activation neutronique

Cette méthode détermine la composition d'échantillons exposés à un flux neutronique après l'irradiation. Il s'agit d'une technique d'analyse qualitative, quantitative et non destructive. Elle est basée sur la détection des rayonnements caractéristiques des noyaux radioactifs formés par irradiation neutronique. Les échantillons qui se prêtent à cette analyse proviennent de nombreux domaines, notamment de la médecine, de la biologie, de la chimie, de l'exploitation minière et de l'environnement telle que la contamination dans des échantillons de sols et la caractérisation élémentaire de l'eau utilisée dans la production d'hydrocarbure [25].

6.3. Spectrométrie alpha

La spectrométrie alpha est une technique d'analyse non destructive très précise dont l'objet est d'identifier et de quantifier les radioéléments naturels et/ou artificiels émetteurs de rayonnements alpha présents dans l'échantillon à analyser et de contrôler la non contamination radioactive dans divers produits [26].

La chaîne de spectrométrie alpha comporte les équipements suivants :

- ✓ Un analyseur alpha (Alpha Analyst)
- ✓ Une source d'étalonnage
- ✓ Un ordinateur avec un logiciel de traitement des données (Génie 2000)
- ✓ Une pompe à vide

Tous les composants de la chaîne sont contrôlés par ordinateur. Il n'y a aucun bouton d'ajustement sur la chaîne. Cependant cette technique nécessite un conditionnement et une préparation fastidieuse des échantillons.

7. Doses de rayonnement

Lorsqu'un noyau se désintègre, il émet des rayonnements, donc l'énergie cédée à la matière traversée, en ionisant un certain nombre d'atomes. La quantité d'énergie cédée par masse de matière irradiée est appelée dose absorbée. Elle est rapportée à l'unité de masse : un Gray (Gy) correspond à l'absorption d'un joule par kilogramme.

L'énergie cédée par les rayonnements ionisants à un organisme vivant entraîne, à l'échelle de matériel cellulaire, des lésions qui peuvent en altérer le bon fonctionnement, voire provoquer la mort cellulaire. Ces effets dépendent à la fois de la dose absorbée et de la manière dont cette énergie est cédée, elle-même fonction de la nature du rayonnement et de son énergie [27]. Pour évaluer l'exposition individuelle d'une personne aux rayonnements, on définit la dose efficace, dont l'unité est le sievert (Sv), c'est une dose biologique très utilisée en radioprotection. Pratiquement les réglementations internationales demandent que le public ne soit pas exposé à un supplément de dose supérieur à 1 mSv par an, que ce soit sous forme d'irradiation interne ou externe.

Spectrométrie Gamma par le détecteur Ge HP

Introduction

La spectrométrie gamma est l'une des méthodes les plus utilisées. Cette technique permet à la fois d'identifier les différents radionucléides et de les quantifier en masse ou en activité. Le détecteur à semi-conducteur type Ge HP est le moyen de mesure utilisé dans la réalisation de ce présent travail, nous l'aborderons plus en détails dans ce présent chapitre. Nous abordons initialement le mécanisme d'interaction du rayonnement gamma avec le cristal Ge HP du détecteur. Nous décrirons ensuite les caractéristiques du spectromètre utilisé et la procédure des mesures effectuées.

1. Mécanisme d'interaction des rayonnements gamma avec la matière

Les photons interagissent avec le détecteur en cédant une partie ou la totalité de leur énergie. Ce dépôt d'énergie génère une quantité de charges électriques proportionnelle à l'énergie déposée. Même si on connaît un grand nombre de mécanismes d'interaction du rayonnement gamma avec la matière, seulement trois types principaux jouent un rôle important dans les mesures du rayonnement: l'effet photoélectrique, l'effet Compton et la création de paires [28].

1.1. Effet photoélectrique

L'effet photoélectrique intervient quand un photon est absorbé par la matière. Le surplus d'énergie communiqué à l'atome est évacué via l'éjection d'un électron d'une des couches électroniques, figure 3.1. On appelle cet électron un photoélectron qui emporte une énergie cinétique E_c égale à l'énergie du photon incident $E_\gamma = h\nu$ diminuée de l'énergie de liaison de l'électron E_b sur la couche électronique qu'il occupe telle que :

$$E_c = E_\gamma - E_b \quad (3.1)$$

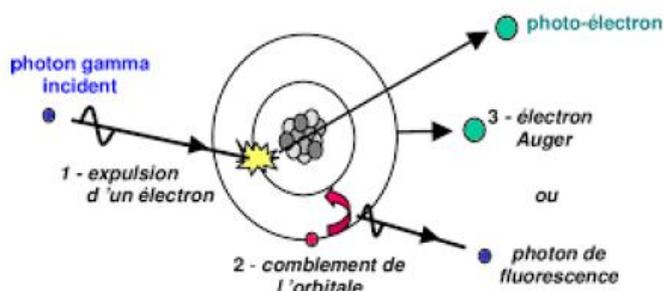


Figure 3.1 : Effet photoélectrique.

1.2. Effet Compton

Dans la diffusion Compton, le photon incident est diffusé par un électron de l'atome d'un angle θ par rapport à sa trajectoire initiale, figure 3.2 [29]. En utilisant la conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement et en considérant l'électron comme étant libre, E_e l'énergie de l'électron, dit électron de recul, s'exprime en fonction de l'angle de diffusion et de l'énergie du photon incident E_γ :

$$E_e = E_\gamma - \frac{E_\gamma}{1 + (1 - \cos \theta)E_\gamma/m_0c^2} \Rightarrow E_e = E_\gamma - E_{\gamma'} \quad (3.2)$$

Où $E_{\gamma'}$: Energie du photon diffusé, m_0c^2 : Energie de l'électron au repos. L'électron a donc une énergie qui varie de 0 (cas où $\theta = 0$) à un maximum correspondant au cas où $\theta = \pi$.

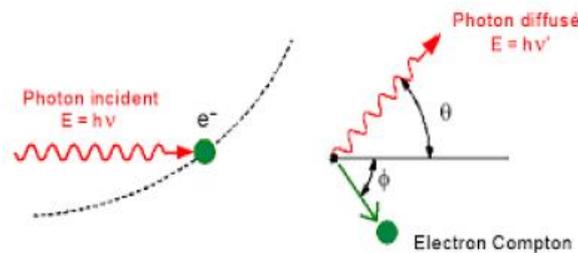


Figure 3.2 : Effet Compton.

1.3. Création de paires

La création de paire est la création d'un positron et d'un électron suite à la disparition d'un photon. Du fait de l'instabilité du positron, après plusieurs collisions, il s'annihile avec un électron produisant deux photons d'annihilation de 511 keV à 180° l'un de l'autre, figure 3.3. Il s'agit donc d'une réaction à seuil possible uniquement pour des photons incidents d'énergies supérieures à 1.022 MeV. Si les deux photons de 511 keV s'échappent du détecteur, l'énergie déposée par une production de paires est de

$$E_e = E_\gamma - 1.022 \text{ Mev} \quad (3.3)$$

E_e : L'énergie cinétique de l'électron, E_γ : l'énergie du photon incident.

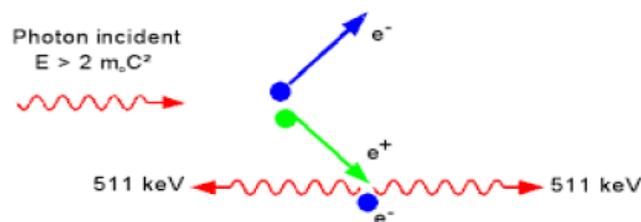


Figure 3.3 : Création de paires.

2. Principe de fonctionnement des détecteurs à semi-conducteurs

Un photon issu de l'élément radioactif interagit avec le cristal de germanium par effet photo-électrique, Compton ou par création de paires. Le photon cède de l'énergie aux électrons du cristal qui peuvent ainsi passer le gap énergétique et être accélérés par une haute tension. Il se crée dans ce cas un courant dont la quantité de charge obtenue est proportionnelle à l'énergie déposée dans le cristal [28,30]. Les paires électrons-trous sont séparées et chaque type de porteurs de charge migre vers l'électrode appropriée. Une charge proportionnelle à l'énergie déposée dans le semi-conducteur est alors collectée aux électrodes, amplifiée puis mise en forme par la chaîne d'acquisition.

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

$$n = E_{abs} / \varepsilon \quad (3.4)$$

ε : L'énergie moyenne nécessaire pour créer une paire électron-trou, $\varepsilon = 2.96$ eV à 77 °K [10].

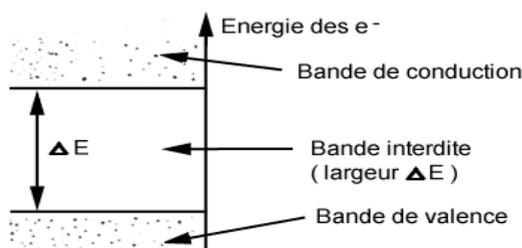


Figure 3.4 : Schéma de niveaux dans un semi-conducteur.

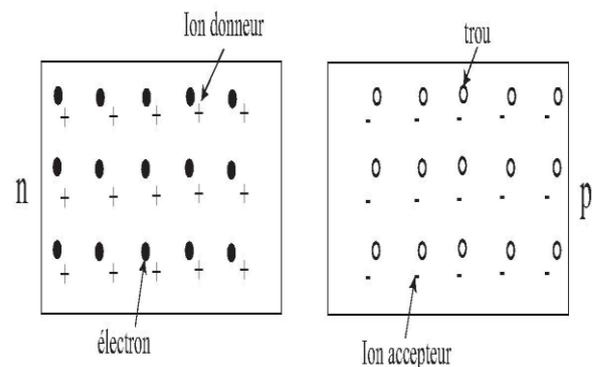


Figure 3.5 : Réalisation d'une jonction P-N à partir de semi-conducteurs P et N.

Le détecteur fonctionne selon la théorie des bandes. Les électrons des couches externes d'un cristal de germanium se répartissent en deux bandes continues : la bande de valence à l'intérieur de laquelle il y a des électrons responsables des liaisons covalentes et la bande de conduction dans laquelle les électrons sont libres. Ces deux bandes sont séparées par la bande d'énergie interdite de l'ordre de 0.75 eV à la température absolue 0°K pour le germanium [30]. Elle est appelée couramment par son équivalent anglais plus court 'gap', figure 3.6.

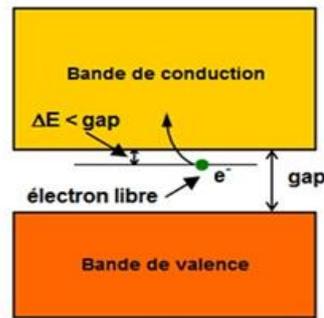


Figure 3.6 : Structure de bande d'énergie d'un semi-conducteur dope de type N.

Jonction PN est polarisée en mode inverse pour obtenir une large zone de déplétion. Un rayonnement gamma traversant la zone désertée d'une jonction PN polarisée en inverse va créer de nombreux paires électrons-trous [31,10]. Les électrons vont se diriger vers le pôle positif et les trous vers le pôle négatif ainsi le passage d'un rayonnement sera révélé par l'apparition d'un courant. Figure 3.7 et 3.8.

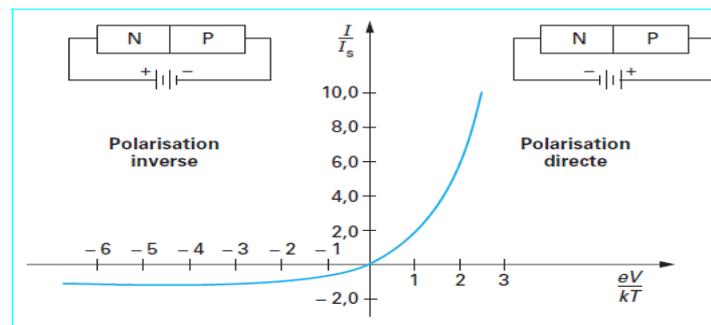


Figure 3.7 : Caractéristique $I = f(V)$ d'une jonction PN.

La collection des charges aux bornes du détecteur génère des impulsions électriques d'amplitudes proportionnelles à l'énergie des électrons primaires mis en mouvement [30]. L'ensemble de ces informations constitue le spectre en énergie qui se caractérise en particulier par les pics d'absorption totale. Les avantages de ce type de détecteurs se résument comme suit :

- Minimum de fluctuations statistiques dans la mesure.
- La densité élevée le rend plus approprié pour la détection des photons dans une plage d'énergie allant de la dizaine de keV à la dizaine de MeV avec une bonne efficacité de détection.
- Une résolution en énergie est dix fois supérieure à celle du détecteur NaI (Tl), ce qui permet une meilleure séparation des raies.
- La réponse en fonction de l'énergie présente une bonne linéarité.
- Un faible bruit de fond.
- Le temps de collection des charges est raisonnable.

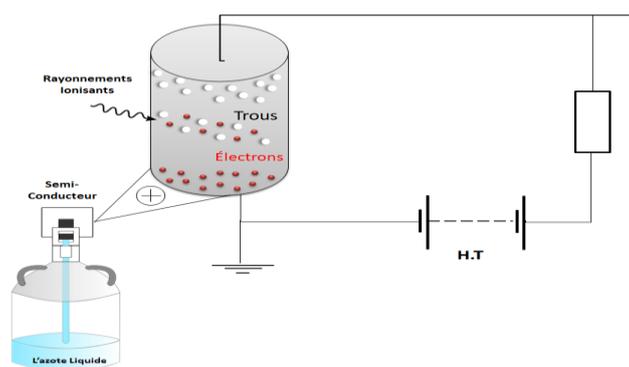


Figure 3.8 : Principe de fonctionnement d'un détecteur semi-conducteur.

3. Présentation de la spectrométrie gamma

3.1. Présentation du détecteur Ge HP utilisé

Pour l'analyse spectrale, nous avons utilisé un détecteur de model GR3019 de **géométrie coaxiale** type N. Son efficacité relative est de 30 %. Il a un volume actif de 340 cm^3 et un pouvoir de résolution égal à 1.9 keV pour le pic 1332 keV du C^{60} . La tension de polarisation est égale à -3500V délivrée par un module haut tension et modèle **659 d'ORTEC**. Le cristal Ge HP est monté verticalement sur le cryostat à l'azote liquide à 77°K . Les données spectrales du détecteur ont été récoltées sur un analyseur multi-canal modèle **DSA** de 8192 canaux.

Un château de plomb de 100 mm d'épaisseur protège le détecteur du bruit de fond. Celui-ci est renforcé par une plaque de cuivre de haute pureté de 3 mm d'épaisseur pour réduire les rayons X de freinage (Bremsstrahlung) dû aux rayonnements Beta émis par l'échantillon lors du comptage [30].



Figure 3.9 : Chaîne de spectrométrie gamma au CRND utilisée dans le présent travail.

Le système de détection est donc composé d'un cristal de germanium, d'un château de plomb permettant d'atténuer le bruit de fond extérieur. Il comporte également une structure en cuivre pour atténuer les rayons X issus de freinage et d'interaction gamma-structure du détecteur. Un cryostat permet de baisser la température du cristal et atténuer le courant parasite issu de l'agitation thermique dans le cristal [10] Figure 3.10.

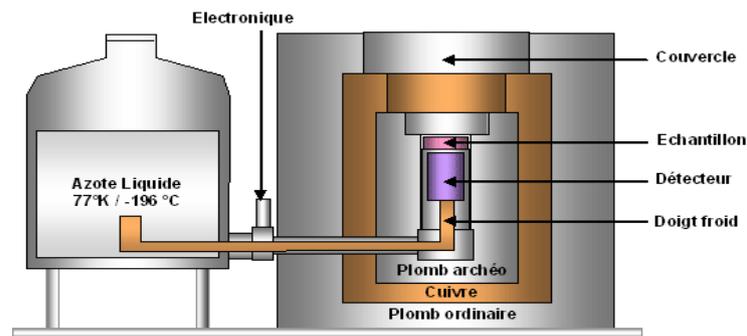


Figure 3.10 : Structure du détecteur germanium haute pureté (Ge HP).

3.2. Présentation de la chaîne de mesure associée

Le but de cette chaîne est de relier le signal électrique à une énergie et ensuite de comptabiliser les différentes énergies obtenues. Elle comporte les éléments suivants, figure 3.11 :

- **Le préamplificateur** : le signal à l'entrée n'est pas proportionnel à l'énergie déposée dans le cristal, mais son intégrale est égale à la charge collectée qui dépend de l'énergie déposée. Le préamplificateur est un montage intégrateur qui permet de réaliser le lien avec l'énergie déposée.
- **L'amplificateur** : sert à la mise en forme du signal et à son amplification pour minimiser le bruit et obtenir un signal gaussien.
- **Le convertisseur analogique-numérique** : à la sortie de l'amplificateur le signal est continu, le convertisseur transforme l'amplitude du signal en un nombre proportionnel à l'énergie déposée dans le cristal.
- **L'analyseur multicanaux** collecte, classe et enregistre les informations dans différents canaux. Chaque canal correspond à une énergie. Cela permet d'obtenir un histogramme en temps réel dans lequel l'énergie déposée dans le cristal est relié au numéro du canal. Le nombre de coup dans un canal donné est proportionnel aux nombres de photons ayant déposé la même énergie dans le cristal.
- **Le logiciel Gamma vision** est utilisé pour le traitement et l'analyse spectrale. Il comporte une base de données qui permet l'identification des radioéléments par exploration des pics photoélectriques. Il détermine les aires des pics et déduit le nombre de photons détectés à travers le processus d'interaction photoélectrique. Ce logiciel permet également de distinguer entre deux pics presque confondus.
- **La haute tension (HT)** permet une polarisation inverse des semi-conducteurs (augmentation de la région d'appauvrissement) [32].

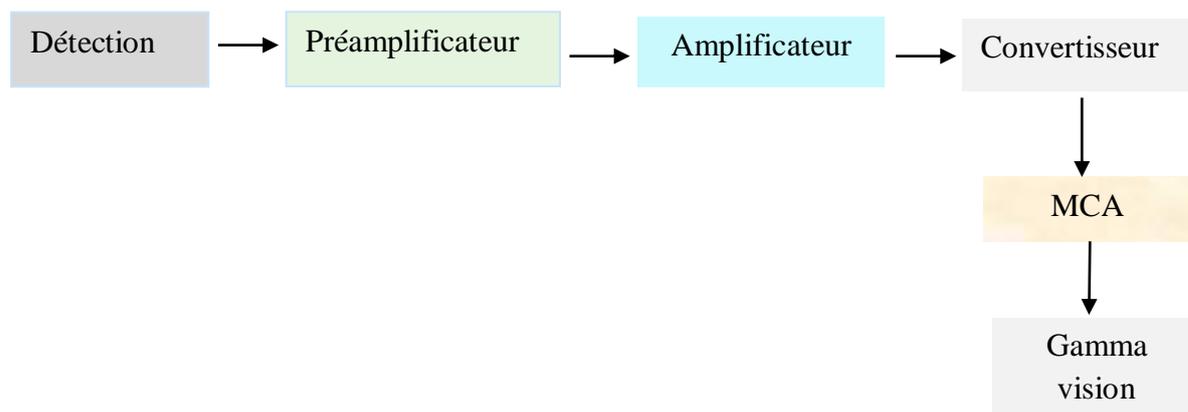


Figure 3.11 : Chaîne de mesure dans la spectrométrie gamma.

3.3. Présentation du logiciel Gamma vision

Ce logiciel est utilisé pour le traitement, l'analyse du signal et l'identification des radionucléides. Il permet d'avoir un spectre avec le numéro de canal en abscisse et le nombre de coups dans le canal correspondant. Ce spectre correspond à un histogramme représentant le nombre de photons mesurés en fonction de leur énergie [32,33].

4. Protocole expérimental adopté

L'analyse des radioéléments dans les échantillons de phosphate brut et marchand est effectuée au Laboratoire d'Analyse par Activation Neutronique du Centre de Recherche Nucléaire de Draria CRND/COMENA en utilisant un détecteur à semi-conducteur Ge HP. Après la calibration de la chaîne de détection en énergie et en efficacité, les mesures nous permettent d'identifier et de quantifier les différents radionucléides présents dans les échantillons [31].

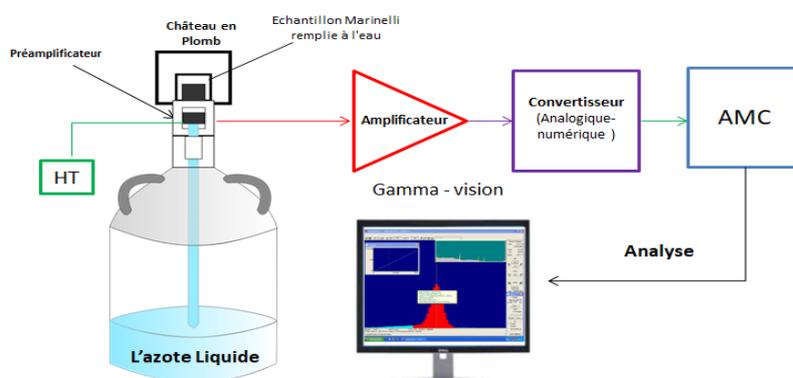


Figure 3.12 : La chaîne d'acquisition de détection.

4.1. Réglage de la chaîne électronique

Cette étape consiste à :

- Changer les paramètres du préamplificateur et de l'amplificateur afin d'obtenir un signal gaussien qui est optimum, car le signal doit croître et décroître suffisamment rapidement afin d'éviter l'empilement de deux différents signaux.
- Régler le temps d'occupation ou temps d'échantillonnage : durée pendant laquelle le signal est enregistré. Celui-ci ne doit pas être trop court afin de prendre le signal dans son intégralité. Il ne doit être pas être trop long afin d'éviter le risque de prendre deux signaux en même temps.
- Régler le gain pour éviter l'enregistrement des rayons X se situant entre 0 et 10 V.

4.2. Calibration en énergie

Une chaîne de détection fournit un spectre en énergie représentant le nombre de photons qui a interagi avec le détecteur en fonction d'un numéro de canal. La correspondance canal/énergie est réalisée par un étalonnage via une source étalon connue. Dans notre cas nous avons utilisé une source d' ^{152}Eu qui est une référence multi-gamma émettant un grand nombre de raies [34 ,31]. Elle permet de couvrir un spectre énergétique très large de 30 keV à 1500 keV.

Le principe est de vérifier que les énergies des pics de l'euporium se situent dans les canaux correspondant au gain de conversion fixé dans l'amplificateur, figure 3.13. Les deux paramètres énergie-canal sont liés par la relation linéaire suivante.

$$E = a C + b \quad \text{avec : } a = 0.5 \text{ keV/C, et } b = 0.28 \text{ keV}$$

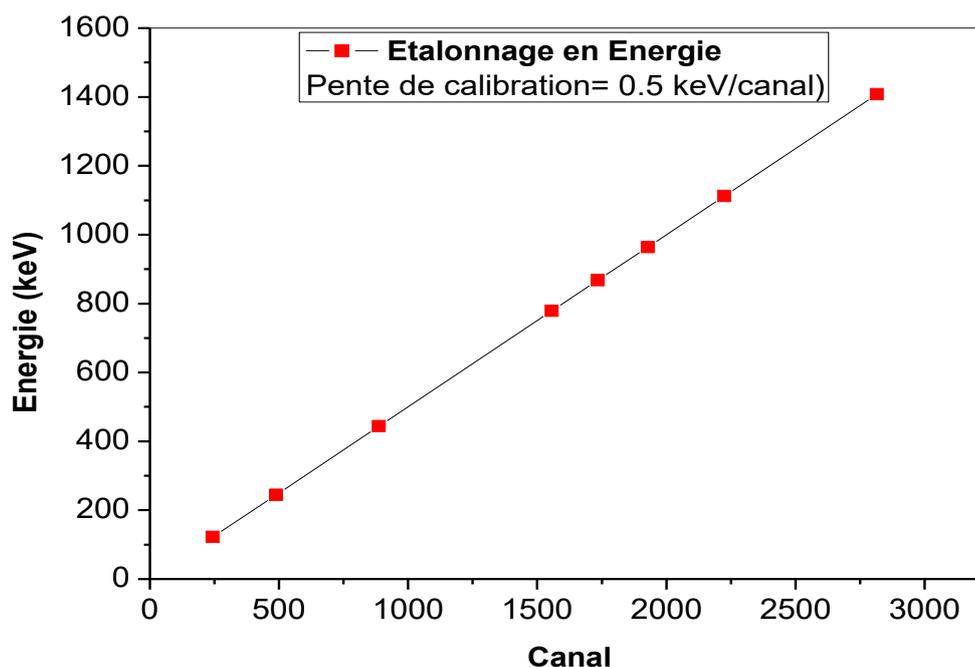


Figure 3.13 : Courbe de calibration en énergie des canaux du spectromètre.

La performance de la chaîne de détection, en termes de discrimination en énergie, est directement liée à sa résolution. Comme on l'a vu, la résolution du détecteur s'exprime en fonction :

- des fluctuations statistiques dans la production de charges,
- des défauts de collecte de charges,
- du bruit électronique [10, 36, 12].

Même avec des détecteurs de haute résolution, les pics d'absorption totale s'étalent sur plusieurs canaux, entre trois et dix canaux. Leur profil est symétrique et l'emplacement de l'axe de symétrie représente l'énergie du photon initial. La résolution en énergie d'un détecteur s'exprime par l'intermédiaire de la largeur à mi-hauteur des pics d'absorption [32,35].

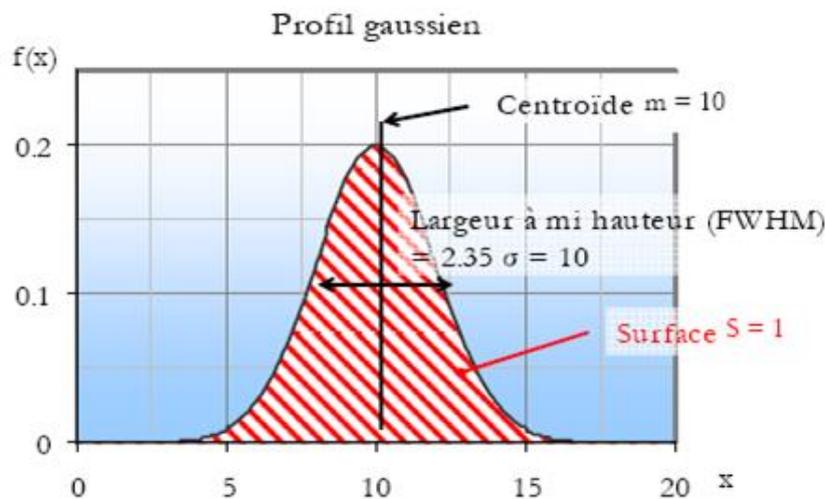


Figure 3.14: Définition de la FWHM d'un pic d'absorption.

4.3. Calibration en efficacité

Pour établir un étalonnage en efficacité, on doit utiliser des sources étalons qui sont de natures et de formes semblables à celles de l'échantillon à analyser. Celles-ci sont référencées par une activité massique, volumique ou un taux d'émission photonique des principales raies γ .

Une courbe de rendement en fonction de l'énergie est obtenue pour une géométrie et une matrice similaire à celle des échantillons analysés. A partir de cette courbe, les efficacités de détection des différents pics du spectre de l'échantillon sont exploitées pour le calcul de l'activité. Cependant, lorsque l'échantillon est différent de l'étalon, il est nécessaire de corriger l'efficacité pour les effets de matrice et l'effet de pic-somme dû aux transitions en cascade et aux empilements (cas des taux de comptage élevés) [11,36].

Dans notre cas il n'existe pas de sources étalons qui sont similaires en forme, composition et densité à nos échantillons, donc la méthode expérimentale est impossible. Pour cela, les efficacités en énergies sont calculées pour chaque raie par le code **MCNPX**. Les simulations sont réalisées par les éléments du Laboratoire d'Analyse par Activation Neutronique du CRND.

Il est important de mentionner que les calculs par **MCNPX** ne nécessitent aucune correction de l'effet de coïncidence des pics et d'auto absorption. Ces effets sont intrinsèquement pris en compte dans la simulation [33]. La courbe d'efficacité ci-dessus présente des valeurs estimées avec une erreur relative inférieure à 0.6% pour les deux échantillons (échantillon du produit brut et marchand) [37].

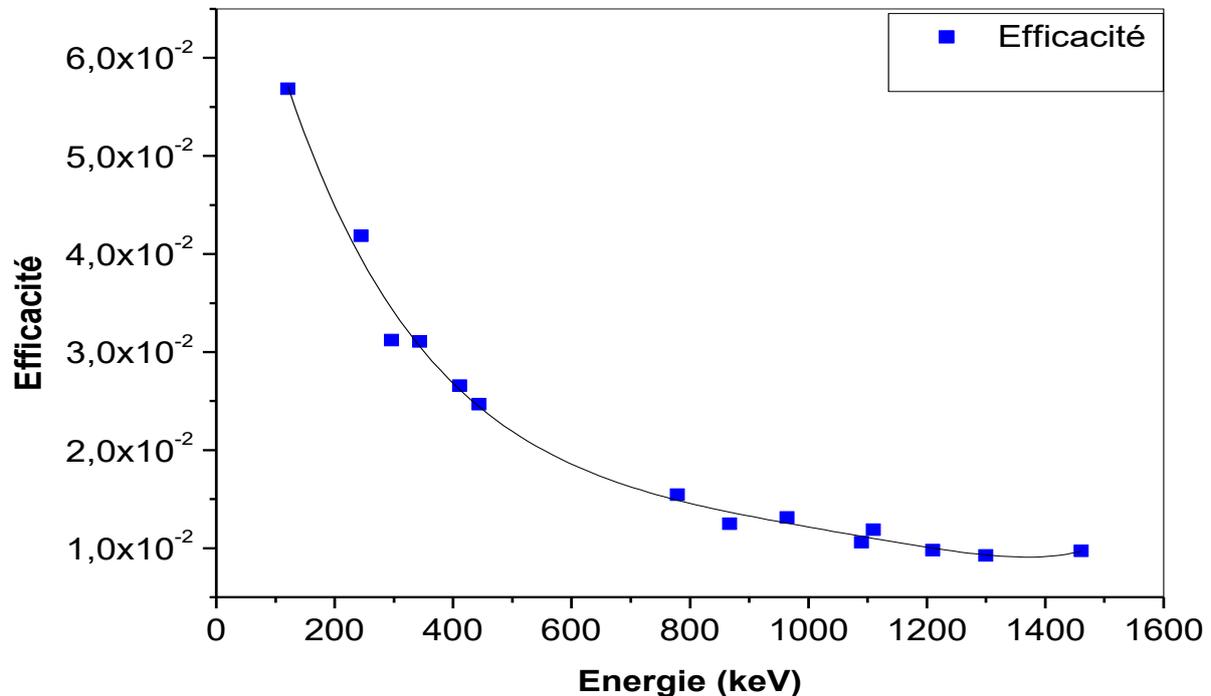


Figure 3.15 : Courbe d'efficacité en fonction de l'énergie.

A partir de la courbe d'efficacité nous avons pu calculer les valeurs des concentrations des radioéléments présents dans les deux échantillons du produit de phosphate brut et marchand, en utilisant la formule liant l'efficacité absolue à l'activité.

Pour une énergie E donnée, l'efficacité absolue se calcule en utilisant la relation suivante :

$$\epsilon_E = \frac{N_{\text{net}}}{A_c m I_\gamma t_{\text{ac}}} \quad (3.5)$$

L'activité est donc, donnée par :

$$A_c = \frac{N_{\text{net}}}{\epsilon_E m I_\gamma t_{\text{ac}}} \quad (\text{Bq/kg}) \quad (3.6)$$

ϵ_E : Efficacité de détection pour une énergie E donnée.

$N_{\text{net}}(E)$: Nombre de coups net (après soustraction du bruit de fond) (Cps).

t_{ac} : Temps de comptage (s).

I_γ : Probabilité d'émission.

m : Masse de l'échantillon (kg).

Conclusion

La technique de détection par le spectromètre Ge HP est l'une des meilleurs techniques, et cela pour les avantages dont elle bénéficie par rapport à d'autres techniques, la bonne résolution en énergie, l'efficacité, sa linéarité et également la probabilité importante d'interaction des rayons gamma avec le cristal de Ge HP qui possède un numéro atomique supérieur.

Pour toutes ces caractéristiques précédentes, de plus sa disponibilité et sa facilité de manipulation, On estime que le choix de la spectrométrie gamma par détecteur à germanium est adéquat Il est également adapté à notre recherche.

Mesures et analyse des résultats

Introduction

Dans cette partie, nous allons présenter les mesures effectuées par la spectrométrie gamma moyennant le détecteur Ge HP du Laboratoire d'Analyse par Activation Neutronique au CRND. Il s'agit d'identifier les radionucléides (en particuliers ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K) et leurs concentrations respectives dans les échantillons de phosphate d'un produit brut et marchand provenant du gisement de Bled El Hadba à Djebel Onk. Les mesures du bruit de fond, de la limite de détection, les activités des échantillons ainsi que les calculs des doses et les indices de risque radiologique seront également présentés.

1. Prélèvement des échantillons

Le minerai de phosphate peut se retrouver sous plusieurs formes. Ses formes changent selon le traitement subit après son extraction. Dans notre cas, on désire analyser le minerai sous deux formes :

- ❖ La roche de phosphate dans son état brut sans aucun traitement préalable.
- ❖ La pulpe de phosphate brut ayant traversé le processus de lavage. Il s'agit du produit marchand.

Ces échantillons proviennent du gisement de Bled El Hadba à Djebel Onk.



Figure 4.1 : Echantillons du minerai de phosphate du gisement de Bled El Hadba.

2. Préparation des échantillons

Dans la présente étude, les deux échantillons de phosphate brut et marchand, préalablement séchés, ont été broyés en une poudre fine à l'aide d'un broyeur mécanique. Ils sont ensuite placés dans des béciers creux de type Marinelli afin d'assurer une géométrie 4π et augmenter l'efficacité du détecteur Ge HP. Ces Marinellis sont nettoyés au préalable avec de l'acide chlorhydrique et rincés plusieurs fois à l'eau bi-distillée. Une fois rempli de la poudre de phosphate, ces derniers sont scellés par un film de paraffine très fin pour éviter l'échappement de gaz en particulier celui du radon. Après 24 jours

d'entreposage, l'équilibre séculaire entre le ^{226}Ra et ses descendants est atteint. Cette durée représente environ 7 fois la période radioactive du ^{222}Rn . On procède après celle-ci à l'acquisition des spectres gamma [36].



Figure 4.2 : Echantillons conservés dans des Marinellis et scellés par un film de paraffine.

3. Mesure du bruit de fond

Le bruit de fond est déterminé en utilisant un b cher Marinelli rempli d'eau bi-distill e et d -ionis e. Celui-ci est entrepos  sur le d tecteur de la m me mani re que les  chantillons. Un comptage de 24 heures est effectu  dans les m mes conditions que celles des  chantillons.

Le spectre de bruit de fond ci-dessous r v le la pr sence des radionucl ides de la s rie de l'uranium et du thorium, tableau 4.1.

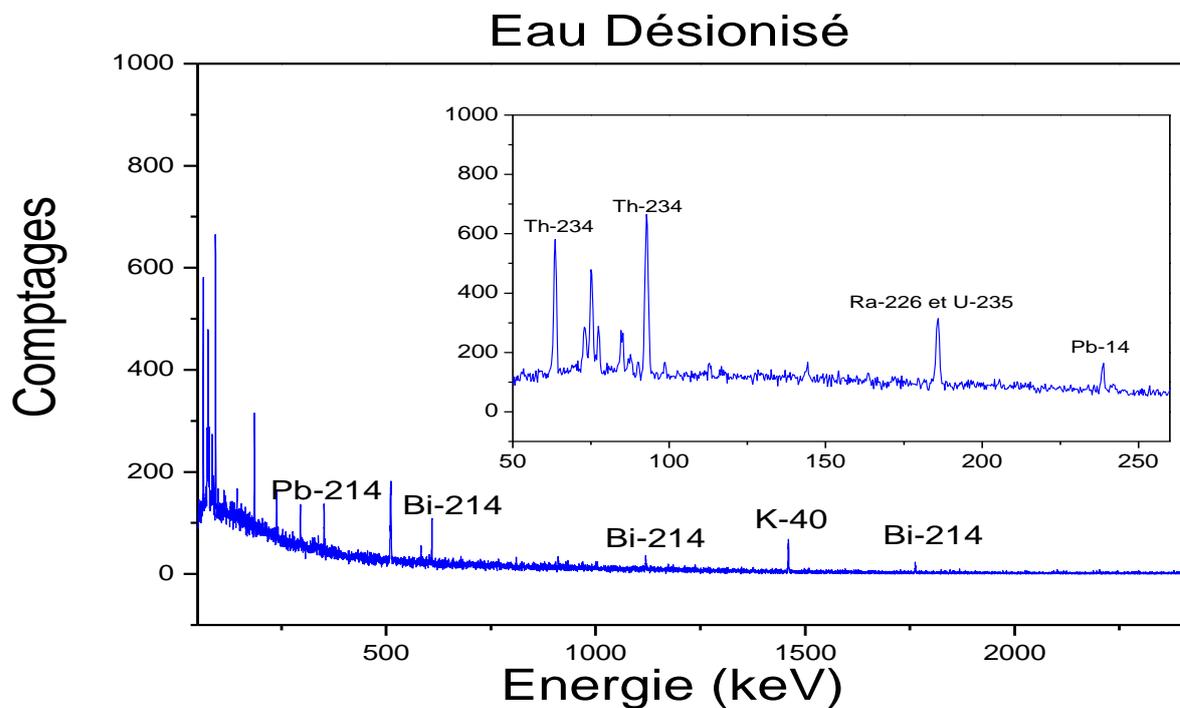


Figure 4.3 : Spectre de bruit de fond obtenu pour un comptage de 24 heures.

Tableau 4.1 : Comptage du bruit de fond pendant 24h.

Radionucléides	E_γ (keV)	Bruit de fond
^{214}Pb	351.9	174
	241.98	52
^{214}Bi	609.3	160
	1120.82	55
	1238.11	35
^{228}Ac	911.6	125
	968.97	14
	964.64	48
	338.3	0
^{208}Tl	583.2	124
	860.5	49
^{235}U	143.7	128
^{40}K	1460.8	544
^{234}Th	63.3	1388

4. Limite et seuil de détection

Les limites de détection servent comme moyen d'estimation de niveau de confiance des mesures effectuées. Ces limites sont basées sur le rapport signal-sur-bruit obtenu dans le spectre. La sélection d'une région du pic d'absorption dans un spectre avec un certain degré de confiance joue un rôle important dans la détermination du signal utile. Ces limites ont été estimées à partir de l'équation suivante [18] :

$$\mathbf{LMD} = \frac{LD}{\varepsilon \gamma I \gamma m} \quad (4.1)$$

Où LD est la limite de détection calculée à partir de la formule de Curie [37] :

$$\mathbf{LD} = 1.645 \left(\frac{\sqrt{B}}{T} \right) \quad (4.2)$$

B est le bruit de fond sous le pic d'intérêt, T est le temps réel de comptage et m est la masse de l'échantillon.

Le tableau 4.2 montre que les limites de détection calculées pour toutes les raies sont très petites.

Tableau 4.2 : Limites de détection calculées pour les raies des échantillons étudiés.

Radionucléides	E (keV)	B (cps)	LMD (Bq/kg)	
			Phosphate Brut	Phosphate Marchand
²¹⁴ Pb	351.9	174	0.02	0.03
	241.98	52	0.04	0.06
²¹⁴ Bi	609.3	160	0.03	0.04
	1120.82	55	0.09	0.12
	1238.11	35	0.20	0.26
²²⁸ Ac	911.6	125	0.06	0.08
	968.97	14	0.03	0.04
	964.64	48	0.21	0.27
	338.3	0	0	0
²⁰⁸ Tl	583.2	124	0.01	0.02
	860.5	49	0.08	0.11
²³⁵ U	143.7	128	0.03	0.05
⁴⁰ K	1460.8	544	0.44	0.55
²³⁴ Th	63.3	1388	0.29	0.37

5. Analyse qualitative

Les deux spectres mesurés présentent plusieurs pics. Chaque pic correspond à une énergie de rayonnement gamma issu de la désexcitation des noyaux instables ou atomes radioactifs présents dans les échantillons.

Tableau 4.3 : Comptage de l'activité des échantillons pendant 24h.

Radionucléides	E _γ (keV)	N (coups)	
		Phosphate Brut	Phosphate Marchand
²¹⁴ Pb	351.9	387550	401229
	241.98	111488	115385
²¹⁴ Bi	609.3	272369	279665
	1120.82	55592	56709
	1238.11	20270	20809
²²⁸ Ac	911.6	17372	17202
	968.97	9888	9855
	964.64	4197	4457
	338.3	1748	17884
²⁰⁸ Tl	583.2	25660	26021
	860.5	2791	2989
²³⁵ U	143.7	11916	10913
⁴⁰ K	1460.8	5950	2991
²³⁴ Th	63.3	66578	69014

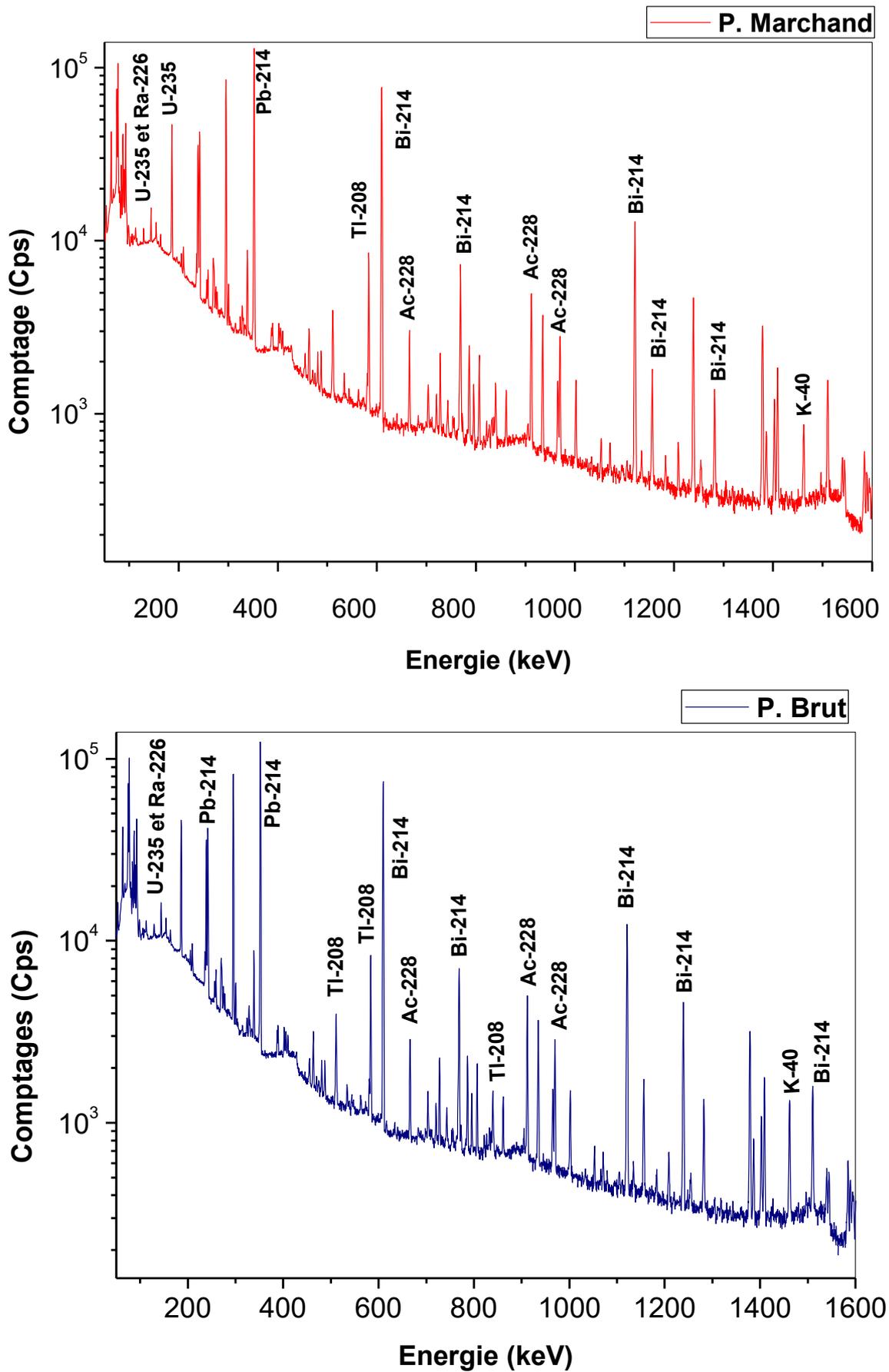


Figure 4.4 : Spectres des différents échantillons mesurés par spectrométrie gamma.

L'analyse des spectres se fait de la manière suivante :

- ❖ Positionner le pic d'énergie pour identifier le radioélément présent dans l'échantillon.
- ❖ Calculer l'aire du pic (ou nombre d'impulsion) pour déduire le nombre de photons d'énergie donnée émis par le radioélément.
- ❖ Il est impossible de calculer directement l'activité de ^{226}Ra à partir de son pic qui coïncide avec celui de ^{235}U . Cependant les pics de ^{214}Pb et ^{214}Bi sont plus nets et permettent, par un calcul indirect, comme indiqué au l'équation (4.4), de déterminer la concentration de ^{226}Ra avec une meilleure précision.
- ❖ Les spectres obtenus pour nos échantillons sont donnés dans la figure 4.4.

6. Analyse quantitative

Les activités spécifiques des radionucléides présents dans les échantillons sont calculées à l'aide de l'expression suivante [38] :

$$A = \frac{n_{N\gamma} - n_{BF}}{\epsilon_{\gamma} t_{aq} I_{\gamma} m} \quad (4.3)$$

ϵ_{γ} : Efficacité de détection pour une énergie E donnée.

$n_{N\gamma}$: Nombre de coups dans le pic d'absorption totale.

n_{BF} : Le bruit de fond.

t_{aq} : Temps d'acquisition de détecteur.

I_{γ} : la probabilité d'émission de photon d'énergie E .

m : masse de l'échantillon en kg.

Tableau 4.4 : Activité des différents échantillons.

Radionucléides	Energie	$I_{\gamma}\%$	Activité (Bq/kg)	
			Phosphate Brut	Phosphate Marchand
^{214}Pb	351.9	37.10	396.25	516.47
	241.98	7.47	421.96	549.79
^{214}Bi	609.3	46.09	398.24	514.79
	1120.82	15.04	429.71	551.85
	1238.11	5.91	426.01	550.60
^{228}Ac	911.6	29.00	57.08	71.15
	968.97	17.46	57.03	71.57
	964.64	5.45	77.11	103.15
	338.3	2.88	22.27	286.89
^{208}Tl	583.2	86	19.34	24.77
	860,5	12	21.04	28.40
^{235}U	143,7	10.50	24.76	28.52
^{40}K	1460,8	10.70	61.98	35.32
^{234}Th	63,3	3.90	311.08	406.25

6.1. Calcul de l'activité de ^{226}Ra , ^{235}U , ^{232}Th et ^{40}K

Le ^{226}Ra appartient à la série de ^{238}U . Son activité est déterminée après obtention de l'équilibre séculaire. Cet équilibre est atteint en piégeant le gaz ^{222}Rn pendant environ 7 périodes après lesquelles les activités du ^{226}Ra et de ses fils (^{222}Rn , ^{218}Po , ^{214}Pb et ^{214}Bi) sont égales.

En observant la figure 4.4, on remarque que seuls ^{214}Pb et ^{214}Bi affichent des pics photo-électriques assez importants. Par conséquent l'activité du radium est déduite de ses deux descendants par la formule suivante :

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

La concentration du ^{40}K est mesurée directement à partir la raie de 1460 keV. La concentration du ^{232}Th est mesurée indirectement à partir de la raie de (911.6 keV et 968.97 keV) d' ^{228}Ac et finalement la concentration du ^{235}U est mesurée directement à partir de la raie bien visible de 143.7 keV.

6.2. Calcul d'erreur

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

- L'erreur sur la masse de l'échantillon ($\Delta_m \sim 0$) car l'incertitude de la balance utilisée est très basse.
- L'erreur sur l'efficacité de détecteur (Δ_ε) négligeable.
- L'erreur sur le temps d'acquisition de détecteur (Δ_t) est très faible.
- L'incertitude sur l'aire du pic (le comptage N et le bruit B) de l'installation de mesure donnée par le logiciel utilisé pour le traitement du spectre (Gamma Vision) est très grande devant les autres types d'incertitude précédents par ce qu'on est dans le cadre de mesures à bas bruit de fond, ainsi, on aura l'expression 4.5 qui exprime l'erreur sur la concentration du radionucléide :

$$\Delta_A = A \sqrt{\left(\frac{\Delta_N}{N}\right)^2 + \left(\frac{\Delta_m}{m}\right)^2 + \left(\frac{\Delta_\varepsilon}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{\Delta_t}{t}\right)^2} \sim A \frac{\Delta_N}{N} \quad (4.5)$$

Tableau 4.5 : Activité des radioéléments ^{226}Ra , ^{234}Th , ^{235}U et ^{40}K mesurées par échantillon.

Echantillons	Activités (Bq/kg)			
	^{226}Ra	^{232}Th	^{235}U	^{40}K
Phosphate Brut	397.24±0.81	57.05±0.77	24.76±0.95	61.98±2.47
Phosphate Marchand	515.63±0.98	71.36±0.98	28.52±1.03	35.32±1.78

6.3. Calcul de l'activité équivalente du radium

L'activité équivalente du radium est définie pour simplifier la présentation des activités mesurées du ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K . Son estimation est basée sur le fait que 370 Bq/kg de ^{226}Ra , 259 Bq/kg de ^{232}Th et 4810 Bq /kg de ^{40}K produisent le même débit de dose de rayons gamma, ICRP [39]. Cette activité équivalente peut être exprimée comme suit :

$$Ra_{eq} = A_{226Ra} + 1.43A_{232Th} + 0.077A_{40K} < 370 \text{ (Bq/kg)} \quad (4.6)$$

A_{226Ra} , A_{232Th} et A_{40K} sont respectivement les activités de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K en Bq/kg.

La valeur maximale de Ra_{eq} recommandée doit être inférieure à 370 Bq/kg dans le rapport d'OECD [40]. Dans le présent travail, Ra_{eq} est estimé pour chaque échantillon prélevé, le tableau 4.6.

6.4. Indice de risque externe et interne

L'indice de risque externe H_{ex} exprime le danger dû à l'exposition externe au rayonnement gamma dans un environnement ouvert. Il a été introduit pour estimer le danger des rayonnements terrestres dans les habitations [41]. Il est défini comme suit :

$$H_{ex} = \frac{A_{226Ra}}{370} + \frac{A_{232Th}}{259} + \frac{A_{40K}}{4818} < 1 \quad (4.7)$$

La valeur maximale de H_{ex} recommandée doit être inférieure à 1. Le risque devient éminent à partir de $H_{ex} = 0.5$ ou des évaluations de dose doivent être organisées.

Outre le danger externe, le radon ^{222}Rn et ses radioéléments à courte durée de vie sont également dangereux pour les voies respiratoires et les organes internes. L'exposition interne au radon et ses produits sont quantifiés par le H_{in} , qui est donné par l'équation suivante [41] :

$$H_{in} = \frac{A_{226Ra}}{185} + \frac{A_{232Th}}{259} + \frac{A_{40K}}{4818} < 1 \quad (4.8)$$

Le tableau 4.6 résume les calculs de H_{ex} et H_{in} pour les deux échantillons.

6.5. Débit de dose absorbée

La principale contribution au débit de dose absorbée dans l'air provient des rayons gamma des radionucléides terrestres présents à l'état de traces dans le sol. Ce débit dépend principalement des activités spécifiques de ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K . Le rapport UNSCEAR de 2008 explique que le débit de dose absorbée dans l'air à 1 mètre au-dessus de la surface du sol peut être donné par [41] :

$$D(nGy/h) = 0.462A_{226Ra} + 0.621A_{232Th} + 0.0417A_{40K} < 55 \text{ (nGy/h)} \quad (4.9)$$

6.6. Équivalent de dose effective annuelle (EDEA)

Le calcul de l'équivalent de dose effective annuelle dépend de la valeur du débit de dose absorbée dans l'air durant une année. Il convient pour son calcul de tenir compte du coefficient de conversion du débit de dose absorbée dans l'air en équivalent de dose efficace reçue par adulte et par fraction d'occupation.

La valeur de ces deux paramètres varie en fonction du climat de la région considérée et de l'âge moyen de la population.

Dans le rapport UNSCEAR 2008, le coefficient de conversion est de l'ordre de 0,7Sv/Gy pour les hommes et les femmes. Comme nous désirons estimer l'EDEA pour les travailleurs de l'usine, nous

avons estimé le facteur d'occupation des lieux de travail sur la base d'un travailleur exerçant 1920 heures par année. Ces heures sont calculées pour un travailleur qui exerce 48 semaines par année soit 52 semaines de l'année moins 4 semaines de congé annuel avec un rythme de 5 jours par semaine et 8 heures par jour. L'équation proposée par [41] devient :

$$EDEA(mSv/an) = D(nGy/h) \times 1920(h/an) \times 0.8 \times 0.7 \times 10^{-6}(mSv/nGy) \quad (4.10)$$

La limite de dose efficace annuelle recommandée est estimée à 1 mSv/an par l'UNSCEAR [41]. Celle-ci est donnée pour une dose intégrale sur une année soit 8760 heures. Nos calculs représentent la dose reçue par le travailleur durant environ le quart de l'année (1920h). On estime que la dose reçue par le travailleur est élevée puisqu'elle représente plus de ¼ de la dose maximale admissible (0.30 mSv).

Le tableau 4.6 résume l'ensemble des activités, doses et indices de risque calculés pour les deux échantillons étudiés. Ces facteurs radiologiques montrent que le risque radiologique pour les travailleurs est évident.

Tableau 4.6 : Activités équivalentes en radium et Indices de risque des échantillons.

Echantillon	$Ra_{eq}(Bq/Kg)$	H_{ex}	H_{in}	$D(nGy/h)$	$EDEA(mSv/an)$
Produit brut	483.59	1.30	2.38	221.02	0.23
Produit marchand	620.39	1.67	3.07	283.36	0.30
Limite radiologique	370	1	1	55	1

Conclusion

Les activités et les indices de risque estimés pour les deux échantillons brut et marchand de Bled El Hadba sont élevés et dépassent les limites recommandées par les organismes scientifiques de radioprotection OECD, UNCEAR et ICRP de [40], [41], [39] respectivement.

Ces résultats imposent une investigation de la radioactivité et des campagnes de mesures plus appropriées en termes de techniques utilisées. Elles doivent cibler les matrices eau, air et sol dans un échantillonnage représentatif.

Conclusion générale

L'étude a porté sur l'évaluation de la radioactivité naturelle de minerai de phosphate dans la région de Djebel Onk. Sur la base de cette étude nous avons déterminé les activités des radioéléments appartenant aux familles de ^{235}U , le ^{232}Th ainsi que ^{40}K dans un échantillon de phosphate prélevé sur le marché Algérien ainsi que dans un échantillon de phosphate brut prélevé du gisement de Bled El Hadba. Les mesures quantitatives et qualitatives de nos échantillons sont effectuées par méthode d'analyse par spectrométrie gamma en utilisant un détecteur Ge HP du Laboratoire d'Analyse par Activation Neutronique du CRND. Une étude radiologique a été ensuite faite afin d'évaluer les risques provoqués.

Nous avons évalué les activités et les indices de risque estimés pour les deux échantillons brut et marchand de Bled El Hadba qui sont également élevés et dépassent les limites recommandées par les organismes scientifiques de radioprotection OECD, UNCEAR et ICRP de [40], [41], [39] respectivement.

Nous avons remarqué que le produit marchand montre une activité supérieure par rapport à celle du produit brut. Cet excès d'activité est introduit dans le phosphate durant le processus d'enrichissement, particulièrement, durant le lessivage où l'eau industrielle utilisée est celle récupérée du pont de décantation. L'amélioration de la qualité radiologique du produit fini est tributaire de l'amélioration de la qualité d'eau de lessivage.

L'activité équivalente radium est de 483.59 Bq/kg et 620.39 Bq/kg respectivement pour le produit brut et le produit marchand. Ce résultat révèle que ces résultats sont environ de 1.5 à 2 fois supérieures à la limite admissible qui est de l'ordre de 370 Bq/kg donnée par ICRP.

L'indice de risque externe H_{ex} évalué pour les travailleurs exerçant à proximité des produits de phosphate est supérieur à l'unité et varie de 1.30 à 1.67. Cela constitue une menace sérieuse pour la santé des travailleurs. Par ailleurs, le souci de la pollution importante de l'environnement doit être sérieusement pris en compte par les autorités concernées.

Ce travail nous a permis de proposer certaines recommandations qui doivent être considérées :

- Des campagnes de mesures radiologiques des matrices sol, air et eau doivent être organisées et réalisées.
- Protection des travailleurs par utilisation des moyen physique de protection tels que le port des masques et la répartition judicieuse de temps de travail dans les milieux à haut risque définis par les campagnes de mesures.

- Création d'un ensemble de règlements internes et de consignes à l'intérieur des unités de production de SOMIPHOS visant à protéger les travailleurs. On peut citer par exemple l'interdiction de manger dans les lieux de travail afin de diminuer les risques de contamination.
- Les nouvelles stratégies de développement de la protection environnementale et humaine doivent être considérées en impliquant toutes les couches de la société afin d'instaurer la culture du respect de l'environnement.
- La protection de l'économie de phosphate pourra être sauvegardée par l'adaptation d'autres techniques de traitement de phosphate afin de revaloriser le produit marchand et diminuer le taux du risque radiologique.
- Possibilité de création de projets socio-économiques intéressants tels que la remédiation des sols après traitement et construction des bassins de décantation conformes aux normes internationales.

Références bibliographiques

- [1] HAMOUDI Souaad. Étude de la distribution des éléments traces dans les minerais de phosphate de Djebel-Onk (Tébessa) et leurs comportements selon les différents procédés de traitement. Mémoire de master, Université de Bejaia, 2011.
- [2] M. Slansky. Disponibilité et besoins futurs en minerais phosphates compte tenu de la lutte anti-pollution et de nouvelles applications possibles ,75 SGN 219 GEO, Orleans, 1975.
- [3] SIS H. CANDER S. Reagents used in the flotation of phosphates ores, a critical review. Mineral engineering, février 2003, pp 577- 585.
- [4] Bou aicha Khouлга Moulai Saliha. Etude de la radioactivité naturelle des rejets liquides issus de l'enrichissement du minerai de phosphate. Mémoire de master, Université de Saad Dahlab 1 Blida, 2015.
- [5] Bouallili Si Yakoub Battou Karim. Evaluation des caractéristiques chimiques et minéralogiques dans le procédé de traitement du minerai de phosphate de gisement de Kef es Sennoun de Djebel Onk (Tébessa). Mémoire de master, Université Abderrahmane Mira de Bejaia 2015.
- [6] BENABDESLAM Nouara. Influence de la composition chimique et minéralogique du phosphate noir de Djebel-Onk (Tébessa) sur le procédé de traitement. Mémoire de Magister, Université Abderrahmane Mira de Bejaia, 2001.
- [7] Zin-El-Abidine Khazen. Elaboration d'un schéma de traitement des rejets +15 mm du phosphate de Djebel Onk pour une production de quatre millions de tonnes. Mémoire de master, Université Larbi Tebessi de Tébessa, 2018.
- [8] H. Beddow, S. Black, and D. Read. Naturally occurring radioactive material (norm) fromna former phosphoric acid processing plant. Journal of Environmental Radioactivity, 2006.
- [9] M. Lassis, A. Mizane, N. Dadda, and R. Reaming. Dissolution of Djebel Onk phosphate ore using sulfuric acid. Environmental Nanotechnology, Monitoring & Management, 2015.
- [10] Azli Tarek. Simulation de la détection des rayonnements gamma par un détecteur en Germanium. Thèses de doctorat en sciences, Université de Setif 1, 2015.
- [11] Bezzi A. Nacer. Gestion de la qualité et valorisation des minerais de phosphate de Bled El Hadba Djebel-Onk (Tebessa). Thèse de Doctorat. Université Ferhat ABBAS–SETIF, 2005.
- [12] MERABET Djoudi. Traitement du minerai de phosphate de Djebel Onk (Tebessa- Algérie). Projet de recherche. LTMGP Université de Bejaia, 2008.
- [13] Stephen Kesle Nicholas Arndt, Clement Ganino. Ressources minérales -2ed.- Cours et Exercices corrigés. Duodi, 2014.
- [14] Marjorie BERTOLUS, Mireille DEFRANCESCHI. Les apatites : des phosphates naturels, Techniques de l'Ingénieur, AF 6 610.

- [15] Christine Bonnet. Les phosphates. Technical report, SNC- Lavalin Inc, 2011.
- [16] I.de GUIDO. La radioactivité naturelle dans les eaux de consommation. Mémoire de fin d'étude formation des ingénieurs du génie sanitaire, ENSP, France, 2000.
- [17] B.MERABET. Mesure de l'activité des matières radioactive naturelles (MRNs) dans le sol de la cimenterie de Meftah-Algérie. Mémoire de master, Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene, Alger, 2019.
- [18] S.SOLTANI. Evaluation du niveau de la radioactivité de l'eau potable autour du gisement de phosphate de Djbel-Onk/Tebessa. Mémoire de master, Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene, Alger, 2020.
- [19] S.DZIRI. Etude expérimentale et simulation Monte Carlo en spectrométrie gamma : Correction des effets de cascade et de matrice pour des mesures environnementales. Thèse de doctorat, UNIVERSITE DE STRASBOURG, 2013.
- [20] A.BRAMKI. Etude de la radioactivité naturelle et artificielle dans les fertilisants et le sol de L'est algérien par spectrométrie gamma. Thèse de doctorat, UNIVERSITE FRERES MENTOURI CONSTANTINE 1, 2018.
- [21] N. THEODORAKOPOULOS. Analyse de la biodiversité bactérienne d'un sol contaminé de la zone d'exclusion de Tchernobyl et caractérisation de l'interaction engagée par une souche de Microbacterium avec l'uranium. Thèse de doctorat, Université d'Aix-Marseille, 2013.
- [22] C.Murray. Etudes expérimentales et simulations Monte Carlo en spectrométrie gamma : Correction des effets de cascade et de matrice pour des mesures environnementales. Thèse de doctorat, Université de Strasbourg, 2013.
- [23] S. C. Sheppard, M. I. Sheppard, M.O. Gallerandb, and B. Sanipelli. Derivation of ecotoxicity thresholds for uranium. *Journal of Environmental Radioactivity*, 79 :55-83, 2005.
- [24] Fiche radionucléide. Thorium 232 et environnement, institut de radioprotection et de sûreté nucléaire. Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire, Autorité de sûreté nucléaire, 2002.
- [25] N.TANGI. Caractérisation des colis des déchets radioactifs par activation neutronique. Thèse de doctorat. L'Ecole Doctorale de Physique de Grenoble, 2016.
- [26] M.MEJRI. Analyse par spectrométrie alpha des radio-isotopes du Thorium et d'Uranium dans le sol (sol de référence IAEA-375 et sol naturel de la région d'Utique (Bizert)). Mémoire d'ingénieur, Université de Tunis El Manar, 2008.
- [27] D.Bard, B.Lévesque, P.Pirard, P.Hubert, P.Verger. Rayonnements ionisants dans Environnement et santé publique, pp.463-477, 2003.
- [28] Boudries Amel. Etude géologique et géostatistique de l'uranium (u) dans le gisement de phosphate de kef sennoun (Algérie orientale). Mémoire de master, UNIVERSITE BADJI MOKHTAR-ANNABA, 2008.

- [29] FERPHOS 1993. Etude de développement du gisement de phosphate de Djebel-Onk(Algérie). Rapport d'expertise géologique.
- [30] Farid AIT MERZEG. Valorisation des rejets du minerai de phosphate de Djebel-Onk (Tébessa). Mémoire de Magister. Université A.Mira Bejaia, 22 Novembre 2010.
- [31] BENABDESLAM Nouara. Influence de la composition chimique et minéralogique du phosphate noir de Djebel-Onk (TEBESSA) sur le procédé de trainement. Mémoire de Magister. Université A.Mira- Bejaia 2001.
- [32] Serge Marguet. La physique des réacteurs nucléaires. Lavoisier, 2011.
- [33] P Joseph. Introduction to nuclear radiation detectors, volume 2. Springer Science &Business Media, 2012.
- [34] BOUKHENFOUF WASSILA épouse AYAD. Concentration de l'uranium application aux fertilisants agricoles. Thèse de doctorat, Université Ferhat Abbas-SETIF UFAS, 2011.
- [35] Azbouche Ahmed. Développement d'une méthodologie d'analyse par spectrométrie, gamma et par activation neutronique pour l'étude de la distribution des radio-traceurs et des terres rares dans le sol. Thèse de doctorat, Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene, 2015.
- [36] K.BOUAICHA et S.MOUZAI. Etude de la radioactivité naturelle des rejets liquides issus de l'enrichissement du minerai de phosphate. Mémoire de master, Université Saad Dahleb, BLIDA, 2015.
- [37] ORTEC. Gamma vision software user manual version 8.1 printed. Technical report, in USA, 2017.
- [38] M.UDDIN KHANDAKER, N.LIYANA MOHD NASIR, NUR SYAHIRA ZAKIRIN, H.ABU KASSIM, KHANDOKER ASADUZZAMAN, DA BRADLEY, MY ZULKII and A.Hayyan. Radiationdose to the malaysian populace via the consumption of bottled mineral water. Radiation Physics and Chemistry, 140 :173-179, 2017.
- [39] International Commission on Radiological Protection. Radiation protection : 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 60 (Oxford : Pergamon Press), (1990).
- [40] OECD 79 Organization for Economic Cooperation and Development, 1979, Exposure to Radiation from the Natural Radioactivity in Building Materials, Report by a Group of Experts of the OECD Nuclear Energy Agency (Paris, France: OECD).
- [41] UNSCEAR (2000), United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (2000) Sources and effects of ionizing radiation. 2000 report. United Nations, New York.