

République Algérienne Démocratique et Populaire  
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

Université Saad Dahleb – Blida 1  
Faculté de Technologie  
Département de Génie des Procédés



## Mémoire de Fin d'Études

En vue de l'Obtention du Diplôme de Master II en Environnement

**Spécialité** : *Procédés de traitement des effluents et protection de  
l'environnement*

### Thème

**Etude de la radioactivité naturelle des rejets liquides issus de  
l'enrichissement du minerai de phosphate**

Réalisé par :

**BOUAICHA Khaoula & MOUZAI Saliha**

Devant le jury :

Président : Mr CHEKNAN.O

Promoteur : Mr BOUZID.B

Co-promoteur : Mr AZLI T

Examinatrice : Mme CHIKH R

Examineur : Mr BENMAAMAR Z

Université Saad Dahleb 1- Blida (USDB)

Université Saad Dahleb 1- Blida (USDB)

Attaché de recherche (CRND)

Université Saad Dahleb 1- Blida (USDB)

Université Saad Dahleb 1- Blida (USDB)

Année universitaire 2014/2015

## *Remerciement*

*N*ous tenons à exprimer notre profonde gratitude envers notre Créateur, pour sa clémence et pour nous avoir donné le courage, la volonté, l'espoir et surtout la santé pour réaliser ce mémoire.

*N*ous exprimons nos sincères remerciements à notre promoteur **Mr BOUZID**. On vous remercie de nous avoir conseillés, encouragés, soutenus et d'avoir mis en valeur le présent travail par vos propositions, remarques et corrections considérables. Trouvez ici l'expression de notre profonde gratitude.

*N*os remerciements s'adressent aussi à **Mr ALLEK**, Directeur de la Division Physique et application nucléaire pour avoir accepté de nous accueillir au Centre de Recherche Nucléaire de Draria (CRND) et **Mr AZLI (CRND)** d'avoir accepté de nous encadrer. Ses précieuses explications et orientations nous ont énormément aidées pour parachever cette étude.

*N*os remerciements aussi à **Mr CHEKNANE** pour nous avoir fait l'honneur d'accepter de présider ce jury.

*N*ous remercions également **Mme CHIKH (USDB)** et **Mr BENMAAMAR (USDB)** d'avoir accepté de faire partie du jury et d'examiner ce présent travail.

*M*erci également à **Mme KHODJA** pour les conseils et les orientations qu'elle nous a donnée pour effectuer ce labeur.

*T*ous nos remerciements vont également à l'équipe du laboratoire d'analyse par activation neutronique.

*À* 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 amour.

*N*ous remercions également **Mme TIFOURA A** pour sa précieuse aide.

*N*ous voudrions exprimer nos reconnaissances envers tous nos amis qui nous ont apporté leur support moral et intellectuel tout au long de notre travail.

*N*ous tenons à remercier chaleureusement toutes les personnes qui ont participé de près ou de loin à l'élaboration de ce travail

*E*nfin, nos remerciements vont à tous ceux qui s'y reconnaîtront.

## SOMMAIRE

Introduction générale.....	1
<i>Chapitre I : Le minerai de phosphate et son enrichissement</i>	
I. Répartition du phosphore dans l'écorce terrestre.....	3
I.1 Les gisements sédimentaires .....	4
I.2 Les gisements d'origine ignée .....	4
I.3 Les gisements de type guanos .....	4
II. Composition des phosphates : .....	4
II.1 Eléments majeurs.....	4
II.2 Eléments en traces .....	4
II.3 Concentration de l'Uranium (U) dans les phosphates .....	5
III. Economie des Phosphates .....	6
IV. Le gisement de phosphate de Djebel-onk .....	6
IV.1 Situation géographique .....	6
IV.2 Processus d'enrichissement du minerai de phosphate.....	8
IV.2.1 La phase de préparation mécanique .....	8
IV.2.2 Voie Humide .....	9
<i>Chapitre II : Notions de Radioactivité</i>	
Introduction .....	15
I. Rappels sur la structure de l'atome.....	15
Classification des noyaux: .....	16
Etats énergétiques des atomes et noyaux.....	16
La stabilité des noyaux .....	16
II. La radioactivité.....	18
II.1. Bref historique : .....	18
II.2. Notions de radioactivité.....	18
II.3. Lois de conservation de Soddy :.....	18
II.4. La désintégration radioactive est un phénomène :.....	19
II.5. Unité de mesure de la radioactivité .....	19
III. Les lois de la radioactivité.....	20
III.1. Loi de désintégration radioactive.....	20
III.2. La période radioactive (ou demi-vie et vie moyenne) .....	21
III.3. L'activité radiologique.....	21
IV. Filiation radioactive.....	21
V. Equilibre séculaire .....	22
VI. Modes de désintégrations radioactives.....	23

VI.1.	La désintégration $\alpha$ .....	23
VI.2.	La désintégration $\beta^-$ .....	24
VI.3.	La désintégration $\beta^+$ .....	24
VI.4.	La capture électronique (CE).....	24
VI.5.	L'émission gamma.....	25
VII.	Radioactivité naturelle.....	25
VIII.	Les séries de désintégration naturelle de l'uranium et du thorium.....	26
VIII.1.	L'uranium et ses séries de désintégration.....	26
VIII.1.1.	La série de désintégration de l' $^{238}\text{U}$ .....	27
VIII.1.2.	Série de désintégration de l'uranium 235.....	28
VIII.2.	Série de désintégration du $^{232}\text{Th}$ .....	30
IX.	La Radioactivité Naturelle technologiquement Renforcée (RNR).....	31
X.	Effets biologiques de la radioactivité (cours radioactivité).....	31
X.1.	Sur l'être humain.....	31
X.2.	Sur l'environnement.....	32
<i>Chapitre III : Spectrométrie gamma</i>		
	Introduction.....	34
I.	Interaction du rayonnement gamma avec la matière.....	34
	Effet photoélectrique.....	34
	Diffusion Compton.....	35
	Création de paire.....	35
II.	Mesure des photons gamma.....	36
II.1.	Le détecteur Germanium.....	37
II.2.	La préamplification.....	37
II.3.	L'amplification.....	37
II.4.	La représentation spectrale (spectrométrie) des photons.....	37
II.5.	Logiciel de traitement de spectre.....	38
III.	Détermination de l'activité d'un radionucléide.....	38
III.1.	Etalonnage en énergie.....	39
III.2.	Etalonnage en efficacité.....	39
III.3.	Détermination de l'activité d'un radionucléide.....	40
III.4.	Mesure de l'activité du $^{226}\text{Ra}$ .....	40
III.5.	Détermination de l'incertitude associée à l'activité du $^{226}\text{Ra}$ .....	41
III.5.1.	Sources d'incertitude.....	41
III.5.2.	Processus d'estimation de l'incertitude.....	42
III.6.	Application du processus à la détermination de l'activité volumique.....	43
IV.	Notion d'Activité minimum détectable (MDA).....	45

## *Chapitre IV : Partie expérimentale*

I. Echantillonnage.....	46
II. Préparation de l'échantillon d'analyse.....	46
III. Mesure par spectrométrie.....	47
IV. Etalonnage de l'installation de mesure.....	49
IV.1. Etalonnage électronique.....	49
IV.2. Etalonnage en énergie.....	49
IV.3. Etalonnage en efficacité.....	51
IV.4. Mesure du bruit de fond.....	53
V. Résultats et discussion.....	56
Conclusion générale.....	60

## *Référence bibliographique*

## Liste des figures

Figure 1: Carte de situation géographique Djebel Onk .....	7
Figure 2: Carte de situation géographique et géologique des gisements de Djebel Onk.....	7
Figure 3: Schéma Technologique de la préparation Mécanique .....	9
Figure 4: L'épaisseur.....	10
Figure 5: Schéma technologique d'atelier du débouillage .....	11
Figure 6: Schéma Technologique du Séchage.....	12
Figure 7: Batterie d'hydro cyclone.....	13
Figure 8: Structure d'un noyau atomique .....	16
Figure 9: Le diagramme de stabilité.....	17
Figure 10: Courbe de décroissance radioactive .....	20
Figure 11: Equilibre séculaire entre le radionucléide père et le radionucléide fils .....	23
Figure 12: Les différents types de rayonnements.....	25
Figure 13: Séries radioactives naturelles de l'Uranium 238.....	28
Figure 14: Séries radioactives naturelles de l'Uranium 235.....	29
Figure 15: Séries radioactives naturelles du thorium 232 .....	30
Figure 16: Schéma de l'interaction photoélectrique .....	35
Figure 17: Schéma de l'interaction Compton .....	35
Figure 18: Schéma de création de paire .....	36
Figure 19: processus d'analyse par spectrométrie gamma .....	37
Figure 20: La représentation spectrale (spectrométrie) des photons .....	38
Figure 21: Procédure de mesure de l'activité d'un radionucléide .....	39
Figure 22: Evolution de l'efficacité en fonction d'énergie de photon.....	40
Figure 23: Le processus de l'estimation de l'incertitude associée au mesurande .....	42
Figure 24: diagramme de cause à effet.....	44
Figure 25: Préparation de l'échantillon pour l'équilibre séculaire .....	47
Figure 26 : Détecteur dans son blindage .....	49
Figure 27 : Chaîne de spectrométrie gamma .....	49
Figure 28: Courbe d'étalonnage en énergie.....	50
Figure 29: conteneur marinelli type I.....	51
Figure 30: Evolution de l'efficacité en fonction de l'Energie (Kev).....	52
Figure 31: le spectre de bruit de fond (Eau désionisée) .....	53
Figure 32: Spectre des rayonnements $\gamma$ émis par l'échantillon d'eau de forage issue de la zone phosphatée.....	54
Figure 33: Spectre des rayonnements $\gamma$ émis par l'échantillon d'eau issue de l'épaisseur (procédé de traitement des phosphates par la voie humide).....	54

Figure 34: Spectre des rayonnements $\gamma$ émis par l'échantillon d'eau de robinet à Bir-El- Ater à proximité du complexe de traitements des phosphates FERFOS .....	55
Figure 35: Spectre des rayonnements $\gamma$ émis par l'échantillon d'eau de forage à Alger.....	55
Figure 36: Activité spécifique du $^{226}\text{Ra}$ dans les échantillons.....	58
Figure 37: Activité spécifique du $^{234}\text{mPa}$ dans les échantillons .....	59

### *Liste des tableaux*

Tableau 1: Teneurs moyennes en élément en traces des échantillons de phosphatites permienes des Montagnes rocheuses, d'après (Guibrandsen, 1966).....	5
Tableau 2: Radionucléides primordiaux.....	26
Tableau 3: Radionucléides cosmo géniques.....	26
Tableau 4: Caractéristique nucléaire du $^{214}\text{Pb}$ et $^{214}\text{Bi}$ .....	41
Tableau 5: Raies gamma de $^{152}\text{Eu}$ utilisées pour l'étalonnage .....	50
Tableau 6: Raies gamma de $^{152}\text{Eu}$ utilisées pour l'efficacité.....	52
Tableau 6: comptages des différents radioéléments identifiés dans les différents échantillons d'eau...	56
Tableau 7: probabilité d'émission et efficacité des raies gamma des radio-isotopes identifiés .....	57
Tableau 8: Activité spécifique des radionucléides analysés.....	57

## الملخص

نقوم في هذه الدراسة على تقييم التلوث الإشعاعي و خاصة الراديوم المحتواة في المياه المستعملة الملوثة المصرفة من طرف مصنع الفوسفات الخام الموجود في منطقة جبل العنق. من بين عواقب الراديوم ذات المستوى العالي التي تسببت في هشاشة أسنان وعظام الإنسان و الحيوان

وقد تبين وجود كسر لأسنان كل من سكان المنطقة و الماشية تم أخذ عينات لأربع مواقع المتمثلة في المياه الباطنية المستعملة من طرف المصنع و العينة الثانية المأخوذة من المياه الملوثة المطروحة بعد الاستعمال. و بالنسبة للعينة الثالثة والرابعة فهي للمياه المستهلكة من قبل سكان بئر العاتر و الجزائر العاصمة. تم تحديد مستوى النشاط الإشعاعي للعينات بالاعتماد على أسلوب التحليل النووي حيث سمحت هذه التقنية بتحديد و تقدير النظائر المشعة التالية الموافقة للسلسلة الطبيعية : اليورانيوم <sup>238</sup> و الثوريوم <sup>232</sup>

أما الطريقة التي سمحت لنا باستخلاص كمية كل من <sup>214</sup>Pb , <sup>214</sup>Bi انطلاقا من الراديوم <sup>226</sup> ولما نصت عليه الوكالة الأمريكية لحماية الإشعاع البيئي أن قيمة المياه التي يستهلكها الإنسان حوالي 185mBq/L وهذا لا يتناسب مع نشاط الراديوم 226 الذي فاق النسبة المعتبرة بأربع مرات كأقصى حد، وهذا نتج عن مخلفات المياه المستعملة و المطروحة من المصنع. ومن جهة أخرى، فان مياه الجزائر العاصمة تختلف عن مياه بئر العاتر وهذا النشاط الراديوم 226 الذي قدرت قيمته على الترتيب ، 220mBq/L و 110mBq/L وهذا ما يوضح أن مياه الجزائر العاصمة اقل نسبة وبالتالي فهي قيمة معتبرة بالنظر إلى القيمة المسموحة.

## RESUME

La présente étude porte sur l'évaluation de la pollution radioactive et particulièrement celle du  $^{226}\text{Ra}$  contenue dans les effluents liquides rejetés par l'usine d'enrichissement du minerai de phosphate implantée dans la région de Djebel Onk. Les conséquences d'un niveau élevé en Radium dans les eaux de boisson se manifestent par une fragilisation irréversible des dents et des os chez les humains et les animaux. Le phénomène de fracture ou fissure précoce des dents a été observé chez les habitants de la région étudiée ainsi que dans le cheptel ovin. Quatre sites de prélèvement sont concernés par l'échantillonnage. Il s'agit de l'eau du puits de forage alimentant l'usine, du rejet liquide issu du dispositif d'épaississement, de l'eau de robinet de la ville de Bir El Ater et de l'eau de forage destinée à la boisson de la région d'Alger. Le niveau de radioactivité des échantillons a été déterminé à l'aide de la technique nucléaire d'analyse basée sur la spectrométrie gamma. Cette technique a permis l'identification et la quantification des radio-isotopes suivants appartenant à la série naturelle de l'Uranium et du Thorium :  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ . La méthode a permis aussi la quantification du  $^{226}\text{Ra}$  à partir de ses descendants qui sont le  $^{214}\text{Bi}$  et le  $^{214}\text{Pb}$ . Dans l'eau de forage alimentant l'usine et les rejets liquides, les résultats ont révélé des activités en  $^{226}\text{Ra}$  quatre fois supérieures à la limite maximale admissible (LMA) pour les eaux destinées à la consommation humaine fixée à 185 mBq/L par l'agence américaine de protection radiologique de l'environnement. D'autre part, les mesures ont aussi dévoilé que l'eau de robinet de Bir El Ater présente une activité en  $^{226}\text{Ra}$  estimée à 220 mBq/L. Cette activité est légèrement supérieure au LMA. Par contre, l'eau de boisson de la région d'Alger affiche une activité en  $^{226}\text{Ra}$  inférieure à la limite de détection de la méthode évaluée à 110 mBq/L.

## ABSTRACT

The study focuses on the assessment of radioactive contamination, particularly the  $^{226}\text{Ra}$  contained in liquid effluents from the beneficiation plant of phosphate, located in the region of DjebelOnk. The consequences of a high level in Radium in drinking water manifest themselves in irreversible weaknesses of teeth and bones of humans and animals. A tooth crack of sheep population was observed in the studied area. Four sampling sites are affected by sampling: the water wellbore feeding the plant, the liquid discharge from the thickener, water faucet of city of Bir El Ater and the water of drink in Algiers. The sample radioactivity level was determined using nuclear analysis technique based on the gamma spectrometry. This technique allowed the identification and quantification of the following radioisotopes belonging to the natural series of Uranium and Thorium:  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ . The method also allowed the quantification of  $^{226}\text{Ra}$  from his descendants who are  $^{214}\text{Bi}$  and  $^{214}\text{Pb}$ . In the well water supplying the plant and liquid waste, the results revealed  $^{226}\text{Ra}$  activities four times greater than the maximum admissible limit (LMA) for water intended for human consumption fixed at 185 mBq / L by US agency for radiation protection of the environment. Moreover, measurements were also disclosed that Bir El Ater tap water exhibits activity  $^{226}\text{Ra}$  estimated at 220 mBq / L. This activity is slightly higher than the LMA. For against, the drinking water of the region of Algiers displays a  $^{226}\text{Ra}$  activity below the detection limit of the method evaluated at 110 mBq / L.

## *Introduction générale*

---

## **Introduction générale**

Pour assurer la sécurité alimentaire de notre pays, l'intensification des systèmes de production agricole est incontournable. Des rendements élevés à l'hectare peuvent être atteints en utilisant le phosphore comme élément pour la croissance des plantes et des animaux. L'utilisation des phosphates naturels (PN) en tant que sources de phosphore peuvent contribuer à l'atteinte des objectifs d'autosuffisance alimentaire. Ces dernières décennies, 90% de la production mondiale des PN sert à la production des engrais. Les autres domaines d'utilisation sont la production de compléments alimentaires pour animaux ou la fabrication de détergents puissants à base de tripolyphosphate de sodium.

Cependant, le Phosphate naturel n'est pas un produit issu directement de l'exploitation des gisements mais provient d'un minerai sur lequel un certain nombre d'opérations est effectué pour éliminer les impuretés et les minéraux indésirables. L'ensemble des travaux réalisés sur le minerai s'appelle le processus d'enrichissement. Ce processus génère malheureusement des déchets liquides et solides qui peuvent contenir non seulement des éléments lourds nocifs pour la santé mais aussi des éléments radioactifs naturels qui par accumulation peuvent surexposer l'environnement par rapport à la situation originelle et par conséquent devenir préoccupants pour la santé de la population.

Le sujet de ce mémoire porte sur la détermination de l'activité spécifique des radionucléides naturels notamment le Radium 226 contenus dans les rejets liquides de l'usine d'enrichissement du minerai de phosphate située à Djebel-Onk. L'intérêt de cette étude réside dans le fait que le minerai extrait contient une concentration d'uranium non négligeable. Les rejets liquides qui peuvent en contenir peuvent être associés au développement de certaines maladies dans la région. La radioactivité des rejets seront évaluées par comparaison à l'eau de forage alimentant l'usine et à d'autres échantillons d'eau prélevés à Alger et à Bir-El-Ater ville située à quelques km du site d'exploitation du minerai de phosphate. On évaluera ainsi le taux de pollution radioactive possible de l'environnement immédiat de l'usine, et des solutions seront suggérées pour y remédier.

Ce mémoire est composé de quatre chapitres. Le premier chapitre est consacré en premier lieu au phosphate et à son utilité pour l'amélioration de l'économie d'un pays. Il y est fait ensuite une description du site de traitement du phosphate ainsi que le procédé utilisé par l'usine de Djebel-Onk pour réaliser l'enrichissement du minerai et obtenir un produit marchand. Le second chapitre présente un rapide rappel des notions de radioactivités car les éléments d'analyse étudiés dans ce mémoire sont radioactifs et sont présents de façon tout à

fait naturelle dans la terre et même dans notre corps. Ce sont malheureusement les activités humaines liées souvent à l'exploitation et au traitement des minerais qui concentrent les radioéléments et accroissent leur nocivité autour de nous. Une partie de ce chapitre est consacrée à la notion d'équilibre séculaire, terme appliqué expérimentalement dans la préparation des échantillons pour la détermination de l'activité des radioéléments étudiés.

Le troisième chapitre porte sur les notions d'interaction du rayonnement gamma avec le milieu de détection, et de la spectrométrie gamma. La compréhension de ces notions est nécessaire pour pouvoir engager et maîtriser la mesure d'activité d'un radionucléide à partir d'un spectre gamma. Dans la partie expérimentale de ce mémoire (chapitre 4), on détaille les étapes du processus d'analyse accompli en commençant par la phase d'échantillonnage jusqu'à la détermination de l'activité des radionucléides. Les résultats d'analyse obtenus y sont aussi commentés. Ce mémoire s'achève par une conclusion générale qui résumera la démarche suivie et une interprétation des résultats obtenus sera apportée.

## *Chapitre I : Le minerai de phosphate et son enrichissement*

---

## Introduction

L'Algérie est classée dans le monde parmi les pays disposant d'importantes réserves de phosphate estimées à environ deux milliards de tonnes. Ces ressources qui se concentrent principalement au niveau du bassin minier de Djebel Onk – Tébessa (Nord Est algérien) peuvent être exploitées soit pour le développement de l'agriculture en améliorant le rendement des exploitations agricoles, soit pour la production de l'acide phosphorique. Elles sont malheureusement exportées presque en totalité sous forme de minerai enrichi par la Société des Mines de Phosphates SOMIPHOS – Filiale de FERPHOS Group actuellement seul propriétaire des mines de Kef Es Sennoun, de Djemi Djema, de Djebel Onk Nord, de Oued Betita et de Bled El Hadba. L'usine de traitement se trouve à quelques kilomètres de la ville de Bir el Ater. Par ailleurs, le processus d'enrichissement du minerai peut aussi constituer une menace pour l'environnement immédiat de la région. En effet, le minerai de phosphate contient non seulement des éléments lourds stables qui sont toxiques pour les organismes vivants mais aussi des éléments radioactifs en quantité non négligeable comme l'uranium, le thorium et le radium. Ces éléments considérés comme lourds sont toxiques et sources de rayonnements nocifs tel que les photons gamma et Bêta qui selon leur intensité peuvent causer des maladies graves. Les rejets liquides ou solides provenant du processus d'enrichissement peuvent, par accumulation concentrer les éléments radioactifs et causer ainsi la pollution de la région. La concentration de l'uranium estimée à 40 µg/g dans le minerai de Djebel Onk est considéré comme acceptable pour une utilisation comme engrais. Dans ce chapitre nous donnerons un aperçu sur la répartition du phosphate dans l'écorce terrestre et sa nature géologique. Nous décrirons aussi la région minière étudiée ainsi que le processus utilisé actuellement en Algérie pour l'enrichissement du minerai de phosphate

### I. Répartition du phosphore dans l'écorce terrestre

La teneur moyenne de l'écorce terrestre a été estimée à 0,23 % de  $P_{2O_5}$  [1]. Des concentrations importantes sont connues dans des contextes intrusifs, mais l'apatite est tout aussi présente dans les roches éruptives et métamorphiques. Le milieu sédimentaire reste de loin le domaine des grandes concentrations phosphatées, qui sont connus dans les sédiments de pratiquement toutes les périodes géologiques [2] depuis le Précambrien jusqu'au Cénozoïque.

Trois types de gisements sont exploités actuellement :

### **I.1 Les gisements sédimentaires**

Les gisements de plate-forme les plus remarquables sont associés aux synclises. Ils sont mis en place sous un climat aride. Les faciès sédimentaires sont essentiellement de trois types: les granulo ou pseudo-oolithes, les nodules et les débris organiques (coprolithes et fossiles phosphatisés). Les gisements sédimentaires sont plus importants en nombre et en volume [3]. Leurs teneurs sont souvent supérieures à 20 % et même à 30 % en  $P_2O_5$ . Les gisements du Djebel Onk font partie des gisements de ce type. Ses ressources peuvent atteindre 2 milliards de tonnes au niveau du bassin de Djebel Onk. [4]. Les phosphates bruts renferment différents éléments chimiques dont l'uranium qui est présent la plupart du temps dans les phosphates sédimentaires quelle que soit leur localisation géographique, à de faibles concentrations (quelques centaines de  $\mu\text{g/g}$ ) [5].

### **I.2 Les gisements d'origine ignée**

Ce type de gisement est associé essentiellement à des complexes intrusifs alcalins. Les roches les plus fréquentes sont les syénites néphéliniques, carbonatites et pyroxénites. Ces gisements sont moins nombreux et souvent moins riches et moins gros que les gisements sédimentaires. Le gisement de Khibiny (URSS) lié à un complexe annulaire à syénite néphélinique représente l'un des principaux gisements de ce type [6].

### **I.3 Les gisements de type guanos**

Ils présentent des ressources plus faibles, mais loin d'être négligeables. Les gisements les plus importants sont dus à des guanos d'oiseaux de mer. Ces guanos contiennent environ 4 %  $P_2O_5$ . Ces organismes réagissent avec la roche qui leur sert de support. Lorsque cette roche est le calcaire, le phosphate de calcium se forme. L'île Nauru, de l'océan pacifique est un gisement de ce type [6].

## **II. Composition des phosphates :**

### **II.1 Eléments majeurs**

Les phosphates contiennent les éléments majeurs (oxydes) suivants:  $P_2O_5$ ,  $SiO_2$ ,  $Al_2O_3$ ,  $Fe_2O_3$ ,  $CaO$ ,  $MgO$ ,  $Na_2O$ ,  $K_2O$ ,  $CO_2$ ,  $SO_3$ ,  $F$ ,  $Cl$  et  $H_2O$ .

### **II.2 Eléments en traces**

Les éléments en traces sont associés soit avec la matière organique ou par l'intégration dans le réseau de l'apatite [7]. 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. L'uranium peut aussi être piégé par la matière organique avec une possible association avec les argiles [8] [9].

Le tableau 1 montre des teneurs moyennes en éléments en traces des échantillons de phosphatites permienne [7].

**Tableau 1: Teneurs moyennes en élément en traces des échantillons de phosphatites permienes des Montagnes rocheuses, d'après [7]**

Elément	Teneur (ppm)	Elément	Teneur (ppm)
<b>U</b>	90	<b>Mo</b>	30
<b>Ag</b>	3	<b>Nd</b>	300
<b>As</b>	40	<b>Ni</b>	100
<b>B</b>	<50	<b>Pb</b>	<10
<b>Ba</b>	100	<b>Sb</b>	7
<b>Be</b>	<0.5	<b>Sc</b>	10
<b>Cd</b>	<50	<b>Se</b>	13
<b>Co</b>	<10	<b>Sr</b>	1000
<b>Cr</b>	1000	<b>V</b>	300
<b>Cu</b>	100	<b>Y</b>	1000
<b>Ga</b>	<10	<b>Yb</b>	10
<b>La</b>	300	<b>Zn</b>	300
<b>Mn</b>	30	<b>Zr</b>	30

### II.3 Concentration de l'Uranium (U) dans les phosphates

Généralement, la teneur en uranium (U) du minerai est souvent inférieure à 100 ppm et ne dépasse qu'assez rarement les 200 ppm [6]. Il est à noter que quelques gisements présentent des teneurs élevées en Uranium, on peut citer le gisement de Bakouma (République Centre-Africain) dont les teneurs varient de 1660 à 5600 ppm pour des teneurs en P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> de 20,37 % en moyenne [10]. D'autre gisement tel que le gisement de Mussourie en Inde (en moyenne 408 ppm), Sibérie (100 à 4000 ppm) [11].

En Algérie, l'uranium a été découvert dans les phosphates de Djebel Onk en 1934 ([12]). Le dosage de l'uranium dans les phosphates a été fait en 1985-1987 par l'EREM. L'estimation

géostatistique de quantité en uranium (U) dans le gisement de Kef Essennoun a été faite par Mezghach [8] et Kchiched [4].

### **III. Economie des Phosphates**

Les phosphates sont classés 11<sup>eme</sup> sur les 53 autres substances naturelles commercialisées dans le monde, ce qui représente une valeur de 3 à 4 milliards de dollars par an. L'industrie des phosphates représente l'une des plus grandes et des plus importantes parties de l'industrie de l'extraction au monde. Elle est considérée comme l'un des principaux supports pour le développement de certains pays tel que le Maroc. L'utilisation des phosphates est initialement associée au développement de l'agriculture qui est une grande consommatrice d'engrais phosphaté. Environ 85% de la production mondiale des phosphates est destinée à la production d'engrais, d'acide phosphorique et aliments de bétail. En dehors du rôle fondamental du phosphore dans la production agricole, les 15% des phosphates d'usage non agricole sont utilisés dans la métallurgie (alliage), l'industrie chimique (pesticides, détergents), pétrolière (lubrifiant), domaines alimentaire et pharmaceutique [13].

### **IV. Le gisement de phosphate de Djebel-onk**

#### **IV.1 Situation géographique**

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



Figure 1: Carte de situation géographique Djebel Onk

Ce bassin minier renferme 5 gisements de phosphate qui sont:

- Gisement de Djemidjema;
- Gisement de Djebel Onk Nord;
- Gisement de Bled El Hadba;
- Gisement de OuedBétita;
- Gisement de Kef Essenoun.

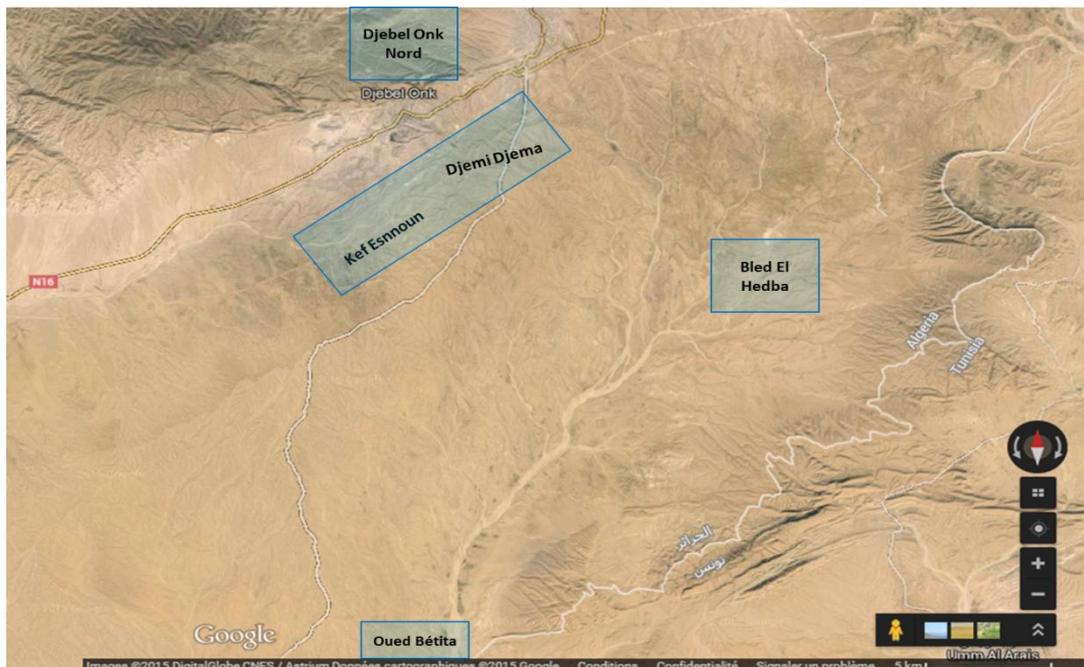


Figure 2: Carte de situation géographique et géologique des gisements de Djebel Onk

Le gisement de Kef Essennoun est situé sur le flanc méridional de l'anticlinal de Djebel Onk, à environ 09 Km au Sud-Ouest de la ville de Bir el Ater.

Le Djebel Onk se présente sous forme d'un massif calcaireux de 20 Km de long qui culmine à 1198 m d'altitude au Djebel Tarfaya et qui, en fait, constitue la limite des hauts plateaux constantinois et du domaine saharien ou prés saharien. Il se situe à la limite de la zone des climats subdésertiques. Il en résulte une végétation pratiquement inexistante.

La pluviométrie se caractérise par des taux très faibles et le réseau hydrographique est rarement mis à contribution. La violence des pluies périodiques provoque des ruissellements torrentiels qui inondent et peuvent changer l'ancienne allure de quelques ravins. Les vents de sables sont fréquents en saison sèche.

La population est peu dense. L'installation du complexe minier à Bir el Ater a contribué à l'agrandissement et au développement de la ville ce qui a engendré l'amélioration de la situation économique de la population.

## **IV.2 Processus d'enrichissement du minerai de phosphate**

Le processus d'enrichissement du minerai consiste à la réalisation d'une succession de travaux, afin d'assurer la découverte et l'extraction en qualité et quantité dans les meilleures conditions. L'enrichissement s'effectue en deux étapes : la phase de préparation mécanique et la phase dite humide [4].

### **IV.2.1 La phase de préparation mécanique**

Cette phase a pour but de réduire les dimensions des blocs des minerais, pour libérer les composants utiles de leurs gangues. Il comporte les trois opérations suivantes : le concassage, le broyage et le criblage.

a) Le concassage : Cette opération a pour but de réduire les blocs du tout-venant alimentant l'usine de traitement d'une dimension d'un mètre jusqu'à une grosseur inférieure à 200 mm. Elle se fait au moyen de deux concasseurs : un concasseur à cône giratoire et un scalpel (concasseur à percussion).

b) Le broyage : Cette opération consiste à réduire le produit concassé jusqu'à une dimension de 20 mm, pour cela 03 broyeurs à marteaux type « Wedag » sont utilisés.

c) Le Criblage : Cette opération consiste à éliminer les matériaux dont la dimension est supérieur à 15 mm à l'aide de trois cribles vibrants à résonance « Wedag », deux autres

cribles vibrants inclinés « Hazemag » ont été mise en œuvre. Le passant du crible ayant une granulométrie inférieure à 15 mm alimente les deux voies pour l'obtention du produit marchand. Le refus dont la granulométrie est supérieur à 15 mm alimente à nouveau les 03 Broyeurs à marteaux type « Wedag » pour être broyée une seconde fois. Dassamiour (2006) *in* [4] a proposé pour le gisement de KefEssnoun le re-broyage du refus ( $>15\text{mm}$ ) issu des 3 Cribles vibrants à résonnance « Wedag » par 3 Broyeurs à Marteaux, car les analyses chimique faites sur ce refus ont montré qu'il titre plus de 20 % en  $\text{P}_{205}$ .

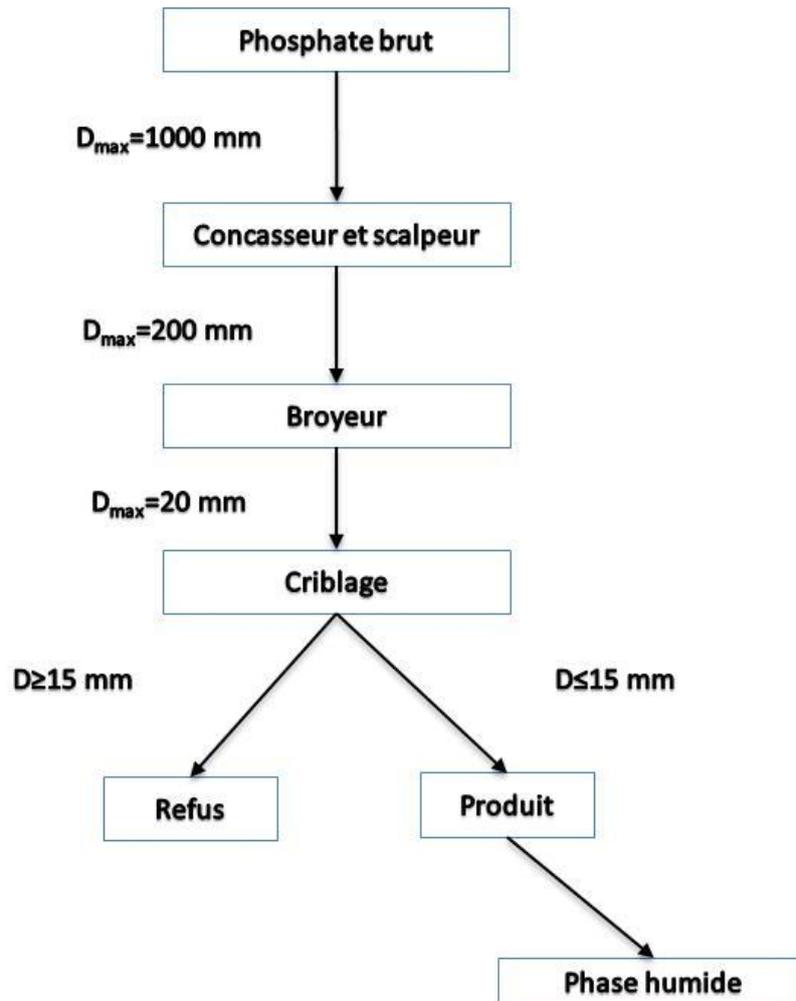


Figure 3: Schéma Technologique de la préparation Mécanique

## IV.2.2 Voie Humide

### a) Débourage

Le débourage consiste à la mise en pulpe du produit criblé dans une proportion liquide/solide de 60 %, pour ensuite alimenter un stade de criblage en humide afin d'éliminer les matières siliceuses et argileuses supérieures à 1mm (appelé coupure haute), au moyen

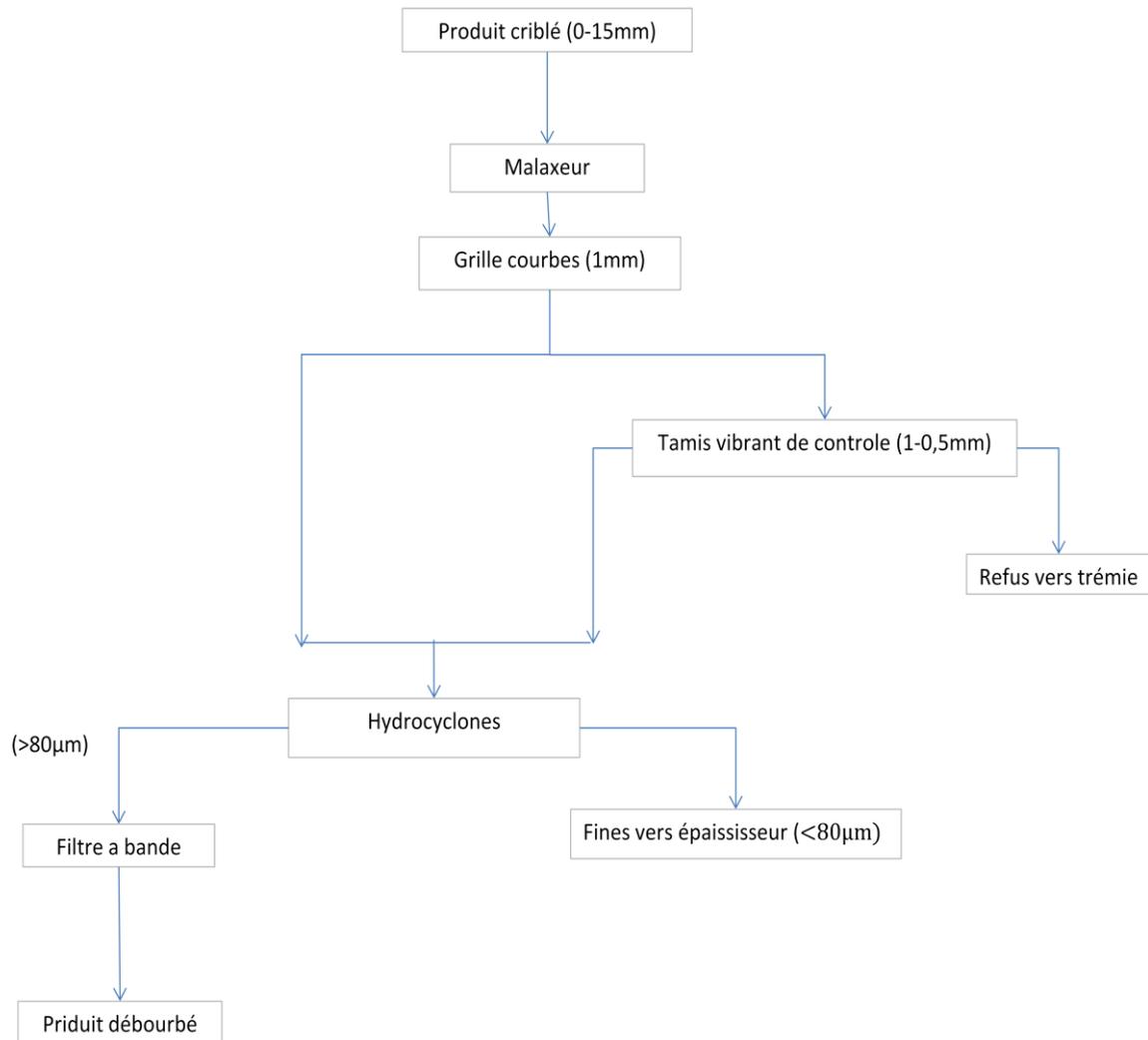
d'une grille courbes et une grilles courbe de contrôle commune pour les trois lignes qui permet de récupérer les grains inférieurs à 1 mm cimentés aux refus.

Enfin, le refus de cette grille de contrôle sera acheminé vers une trémie de déchargement pour ensuite les transportés a des terrils à l'intérieur des fosses créés par l'exploitation.

Tandis que le passant alimente une batterie d'hydro cyclones dont le but est d'éliminer les fines particules inférieures à  $80\mu\text{m}$ , en surverses (appelé coupure basse), cette eau boueuse (shlamms) passe vers l'épaississeur. Ce dernier a pour fonction la régénération de l'eau industrielle, qui sera injecté dans le circuit de mise en pulpe. Les sous verses seront acheminés vers un filtre à bande pour réduire l'humidité du produit jusqu'à 13 %.



**Figure 4: Bassin d'épaississeur**

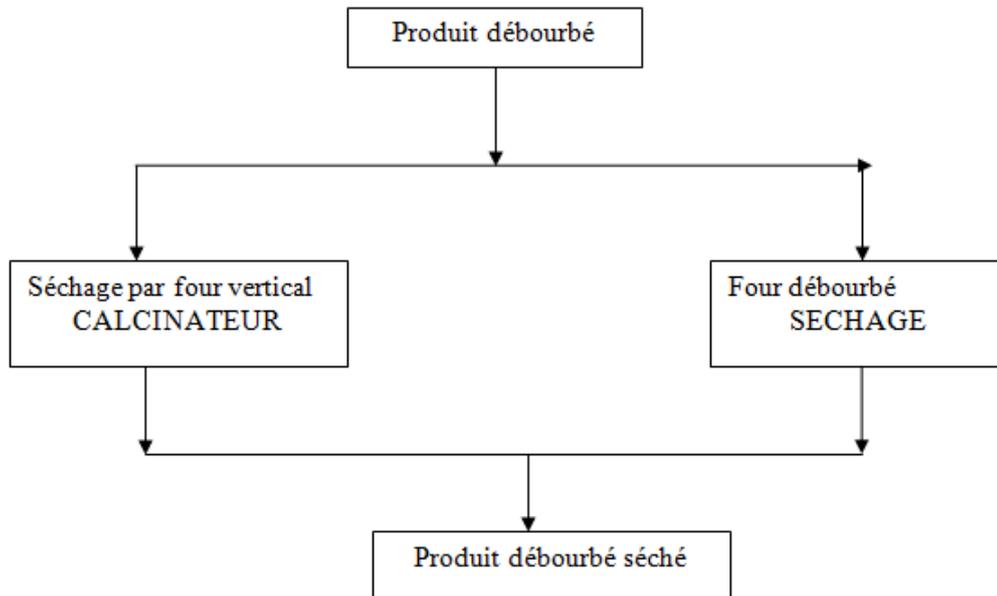


**Figure 5: Schéma technologique d'atelier du débourage**

### **b) Séchage (Par Four de Calcination)**

Le produit débourbé étant un produit semi fini, préalablement destiné à un traitement pyrotechnique par calcination à des températures allant de 700° jusqu'à 900° C pour fabriquer une gamme de qualités.

Des techniciens du complexe ont converti l'installation de calcination existante en four de séchage vertical avec un débit horaire de 60 t/h/ligne le souci et de répondre à la demande croissante en matière de production d'une part et d'autre part rentabiliser l'installation de la calcination et le débourage.



**Figure 6: Schéma Technologique du Séchage**

#### **Séchage (Par Four Horizontal)**

Cet atelier comporte (02) deux fours horizontaux rotatifs dont la température ajustée est à  $105^{\circ}\text{C} \pm 5^{\circ}\text{C}$  l'humidité est réduite à 1 %.

#### **Calcination**

Le rôle de la calcination est la décomposition des carbonates, l'élimination de la matière organique et des matières volatiles se trouvant dans le phosphate débourbé par le procédé thermo-chimique.

Le taux de  $\text{CO}_2$  à l'alimentation est de 7 à 8 %. Il sera réduit de 2 à 4 % par calcination selon la température. La teneur en  $\text{P}_2\text{O}_5$  peut atteindre 33.5 %, en partant d'une alimentation qui titre de 28 à 29 %  $\text{P}_2\text{O}_5$ .

#### **Lavage Post Calcination**

Le rôle de cet atelier est l'élimination des oxydes issus de l'atelier de calcination.

Cette opération s'opère dans des bacs pulsés et des coupures basses par des hydro-cyclones.

#### **Essorage du produit débourbé**

Le produit débourbé hydro-cyclonné présentant une granulométrie de 0,1 à 0,5 mm passe par l'étape de filtration (filtre à bande) pour ramener son humidité à 10%.



**Figure 7: Batterie d'hydro cyclone**

Notre étude s'intéresse dans ce processus d'enrichissement à la concentration des éléments radioactifs contenu dans les rejets liquides évacués par l'usine de traitement. En s'accumulant dans une zone déterminée, ces éléments de nature radioactive peuvent causer la pollution des eaux de surface ainsi que des nappes souterraines, et provoquer ainsi l'apparition de maladie grave parmi la population et les animaux domestiques. Si les analyses révèlent un niveau de concentration élevé des éléments radioactifs, une modification doit être apportée au processus d'enrichissement pour éviter la pollution de la région. Pour l'instant, on a observé parmi la population et les animaux une perte précoce des dents ainsi que des maladies de la gencive.

## *Chapitre II : Notions de Radioactivité*

---

## Introduction

Dans la nature, la plupart des noyaux d'atomes sont stables. Cependant, certains atomes présentent des noyaux instables dus à un excès de protons, de neutrons, ou encore des deux. Ils sont dits radioactifs et sont appelés radio-isotopes ou radionucléides.

Les noyaux d'atomes radioactifs se transforment spontanément en d'autres noyaux d'atomes, radioactifs ou non.

Cette transformation irréversible d'un atome radioactif en un autre atome est appelée désintégration. Elle s'accompagne d'une émission de différents types de rayonnements.

### I. Rappels sur la structure de l'atome

La matière est constituée d'atomes assemblés de manière plus ou moins régulière en molécules, cristaux, etc. Un atome est constitué d'un noyau très dense, de très petite dimension (environ  $10^{-13}$  cm), constitué par A nucléons répartis en Z protons positivement chargés, d'un nombre N de neutrons sans charges, et d'un cortège d'électrons (de charge négative) autour du noyau [14].

Les protons et les neutrons sont appelés des nucléons et leurs masses sont très voisines ( $1.67 \cdot 10^{-27}$  kg). Le nombre de neutron N s'obtient par la différence :  $N = A - Z$

On représente un noyau par un symbole dans lequel X désigne l'élément chimique:



Ces nucléons sont soumis à deux types de forces : une force électrostatique répulsive s'agissant entre les protons, des forces non électrostatiques attractives, d'origines spécifiquement nucléaire, agissant entre tous les nucléons et leur conférant une certaine énergie de liaison  $E_L$ , énergie qu'il faut dépenser pour les séparer complètement les uns des autres.

Les trois paramètres A, Z et  $E_L$  définissent un type de noyau. [15]

On dit qu'ils définissent un nucléide.

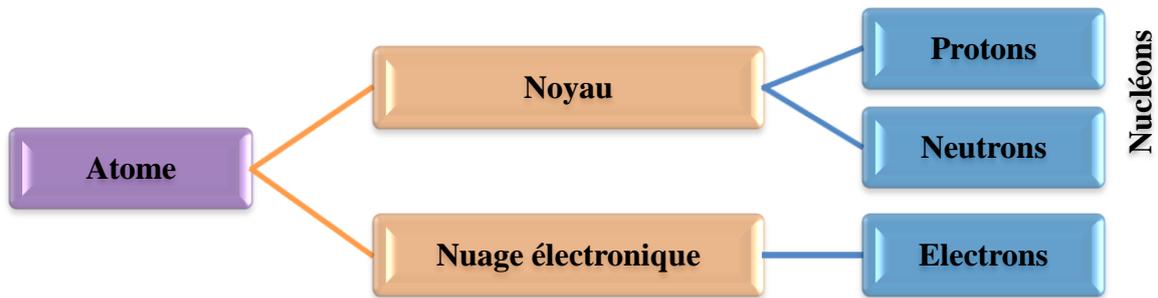


Figure 8: Structure d'un noyau atomique

### Classification des noyaux:

Les noyaux ayant le même nombre  $Z$  de protons s'appellent des isotopes:  ${}^{234}_{92}\text{U}$ ,  ${}^{235}_{92}\text{U}$ ,  ${}^{238}_{92}\text{U}$ .

Les noyaux ayant le même nombre  $N$  de neutrons s'appellent des isotones:  ${}^{15}_7\text{N}$ ,  ${}^{16}_8\text{O}$ .

Les noyaux ayant le même nombre  $A$  de nucléons s'appellent des isobares:  ${}^{40}_{18}\text{Ar}$ ,  ${}^{40}_{20}\text{Ca}$ .  
[15]

### Etats énergétiques des atomes et noyaux

Les atomes peuvent se trouver dans un état fondamental ou dans un état excité. Un état excité est instable et conduit à une désexcitation qui se traduit par une perte de l'excès d'énergie par rapport au niveau d'origine fondamental et ceci en une ou plusieurs étapes correspondant à des sauts d'énergie bien définies. Ces sauts se traduisent par des émissions de photons (rayonnements électromagnétiques).

L'état excité d'un atome peut concerner son noyau ou son cortège électronique. Les sauts d'énergie, correspondant à une excitation ou à une désexcitation, prennent des valeurs bien définies car l'arrangement des nucléons dans le noyau et l'arrangement des électrons dans le cortège peut avoir lieu qu'à des niveaux d'énergie bien définis [16]

### La stabilité des noyaux

La stabilité des noyaux est fonction du nombre de protons par rapport au nombre de neutrons. On distingue en effet deux types de noyaux :

- **les noyaux stables** : ils ont une composition en protons et neutrons qui leur confèrent une structure très équilibrée.

- **les noyaux instables** : ces noyaux ont une composition en protons et neutrons qui rend leur architecture interne plus fragile ; leur structure se modifiera dans le temps, brutalement et spontanément : cette instabilité nucléaire est appelée radioactivité [17]

Le graphe de la figure ci-dessous présente la zone de stabilité par rapport aux valeurs de  $Z$  et de  $N$  ainsi que les zones d'instabilité relatives aux modes de désintégration alpha , beta(+) et Beta (-) dont l'explication sera détaillée plus avant dans ce chapitre.

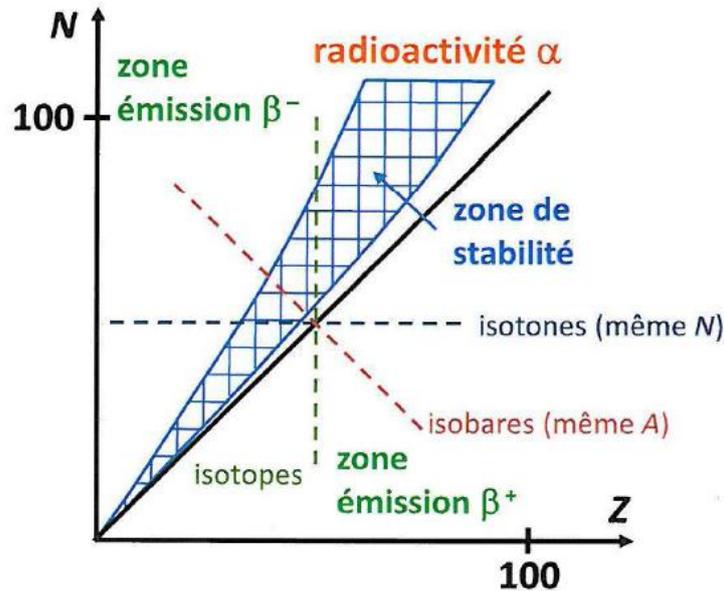


Figure 9: Le diagramme de stabilité

On s'aperçoit que les atomes existants, qu'ils soient naturels ou artificiels, qu'ils soient stables ou radioactifs se regroupent autour d'une ligne qui est voisine de la bissectrice pour  $Z$  (à partir de  $Z=15$ , le nombre de neutrons  $A-Z$  tend à devenir sensiblement supérieur au nombre de proton  $Z$  lorsque la masse du noyau croît).

Les isotopes d'un même élément sont placés sur une même droite verticale dont la portion inférieure correspond à un excès relatif de protons, et la portion supérieure à un excès relatif de neutrons. Les atomes de même nombre de masse  $A$  ou isobare, se trouvent situés sur une même droite perpendiculaire à la bissectrice. [15]

## II. La radioactivité

### II.1. Bref historique :

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

### II.2. Notions de radioactivité

Certains des noyaux d'atomes que nous pouvons rencontrer dans la nature sont instables : ils présentent un excès de particules protons ou neutrons ou les deux qui les conduisent à se transformer en d'autres noyaux d'atomes [18]. On dit qu'ils sont radioactifs car leur transformation s'accompagne de l'émission de rayonnements dont la nature et les propriétés sont variables, en particulier leur pouvoir de pénétration dans les organismes vivants.

La radioactivité ne concernant que le noyau et non les électrons, les propriétés chimiques des isotopes radioactifs sont les mêmes que celles des isotopes stables.

Une soixantaine de noyaux naturels sont instables, ainsi que presque tous les noyaux artificiels. [18]

### II.3. Lois de conservation de Soddy :

Au cours d'une transformation nucléaire naturelle ou artificielle, il y a :

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{Conservation du nombre de masse } A \\ \text{Conservation du nombre de charge } Z \end{array} \right.$$

Au cours d'une réaction nucléaire, il y a également toujours conservation de la quantité de mouvement, et conservation de l'énergie totale (masse + énergie).

**II.4. La désintégration radioactive** est un phénomène :

- Aléatoire : rien ne permet de prévoir exactement quand un noyau radioactif se désintègre. Par contre le rythme de désintégration d'un échantillon est bien connu tant que ce nombre est important.
- Spontané : elle se déclenche seule, sans intervention extérieure ; elle est notamment indépendante de la température, de la pression, de la nature et de la structure chimique du composé auquel il appartient.
- Irréversible
- Inéluctable : rien ne peut ralentir ou accélérer la cadence de désintégration d'un échantillon radioactif.
- indécélable par nos sens (inodore, inaudible, invisible)

**II.5. Unité de mesure de la radioactivité****Le becquerel (Bq)**

Un échantillon radioactif se caractérise par son activité qui est le nombre de désintégrations de noyaux radioactifs par seconde qui se produisent en son sein.

L'unité d'activité est le becquerel, de symbole Bq.

1 Bq = 1 désintégration par seconde.

Cette unité est très petite. L'activité de sources radioactives s'exprimera donc le plus souvent en multiples du becquerel. [15]

**Le gray (Gy)**

Cette unité permet de mesurer la quantité de rayonnements absorbés ou dose absorbée par un organisme ou un objet exposé aux rayonnements. Le gray a remplacé le rad en 1986.

- 1 gray = 100 rads = 1 joule par kilo de matière irradiée.

**Le sievert (Sv)**

Les effets biologiques des rayonnements sur un organisme exposé (selon sa nature et les organes exposés) se mesurent en sievert et s'expriment également en "équivalent de dose". L'unité la plus courante est le mSv, ou millième de sievert. [15]

## Le curie (Ci)

L'ancienne unité de mesure de la radioactivité est le curie (Ci). Le curie avait été défini comme l'activité de 1 gramme de radium, élément naturel que l'on trouve dans les sols avec l'uranium. Cette unité est beaucoup plus grande que le becquerel car, dans un gramme de radium, il se produit 37 milliards de désintégrations par seconde. Donc un curie est égal à 37 milliards de becquerels. [19]

## III. Les lois de la radioactivité

### III.1. Loi de désintégration radioactive

Le nombre,  $dN$ , de désintégrations nucléaires spontanées qui se produisent dans une quantité donnée de matière pendant un temps infiniment petit,  $dt$ , est proportionnel au nombre d'atomes radioactifs  $N$  et au temps  $dt$  [20]

$$dN = -\lambda \cdot N \cdot dt \dots \dots \dots (1)$$

Le signe moins (-) exprime le fait que  $N$  diminue au cours du temps. La constante radioactive  $\lambda$  ( $s^{-1}$ ) est définie positive. Par intégration, on obtient:

$$N(t) = N_0 \cdot e^{-\lambda t} \dots \dots \dots (2)$$

$N_0$  : le nombre d'atomes radioactifs présents à l'instant initial.

$N(t)$  : le nombre d'atomes radioactifs présent à l'instant  $t$ .

La loi de désintégration radioactive est une loi de décroissance exponentielle (Figure10) [21].

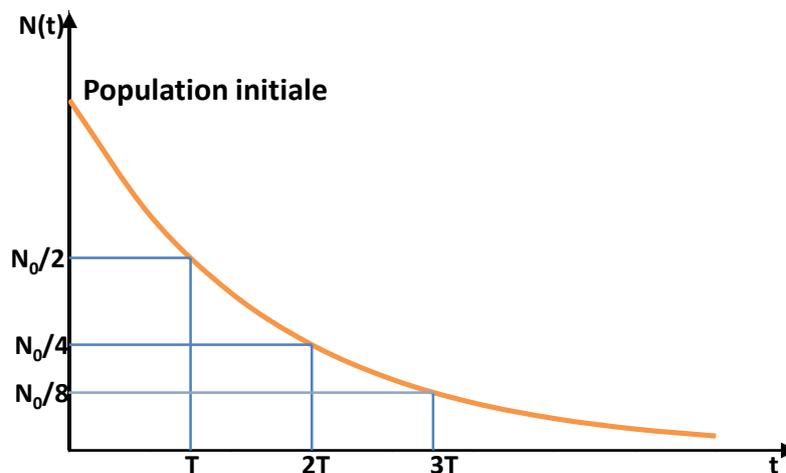


Figure 10: Courbe de décroissance radioactive

### III.2. La période radioactive (ou demi-vie et vie moyenne)

La période T est le temps au bout duquel le nombre de noyaux initialement présent a été divisé par un facteur 2. [22]

$$N(t) = N_0/2 = N_0 \cdot e^{(-\lambda \cdot t)} \dots \dots \dots (3)$$

Et donc :

$$T = \ln 2 / \lambda \dots \dots \dots (4)$$

### III.3. L'activité radiologique

L'activité A d'un radionucléide est le nombre de désintégrations qui se produisent par unité de temps dans une quantité donnée de ce radionucléide [22]. A est le produit du nombre de noyaux radioactifs N présents à un moment donné par la constante radioactive  $\lambda$  :

$$A(t) = \lambda \cdot N(t) \dots \dots \dots (5)$$

L'activité est proportionnelle au nombre d'atomes ; donc elle suit la loi de décroissance radioactive :

$$A(t) = A_0 \cdot e^{(-\lambda \cdot t)} \dots \dots \dots (6)$$

L'activité s'exprime en Becquerels " Bq " avec

On définit aussi l'activité spécifique qui est le nombre de désintégration par unité de poids ou de volume d'échantillon.

## IV. Filiation radioactive

Une filiation radioactive (ou décroissance multiple) est constituée par un enchaînement d'émission de radioactivités successives. Pour une filiation à 2 corps A (père) et B (fils), nous avons aux conditions initiales une population  $N_A(0)$  de noyaux radioactifs et une constante radioactive  $\lambda_A$ . Si A se désintègre en donnant le noyau B, lui-même radioactif de constante radioactive  $\lambda_B$ , la population de noyaux B résultera donc de la production de noyaux B par désintégration de A selon l'expression [18]:

$$N_A(t) = N_A(0) \cdot e^{-\lambda_A t} \dots \dots \dots (7)$$

Ainsi le nombre  $dN_B$  de noyaux présents pendant une variation de temps  $dt$  est donnée par l'expression suivante :

$$dN_B = \lambda_A N_A dt - \lambda_B N_B dt \dots \dots \dots (8)$$

La solution du système d'équations différentielles aboutie à l'expression de  $N_B$  suivantes :

$$N_B(t) = N_A(0) \cdot \frac{\lambda_A}{\lambda_B - \lambda_A} (e^{-\lambda_A t} - e^{-\lambda_B t}) \dots \dots \dots (9)$$

$$A_B(t) = A_A(0) \cdot \frac{\lambda_B}{\lambda_B - \lambda_A} (e^{-\lambda_A t} - e^{-\lambda_B t}) \dots \dots \dots (10)$$

## V. Equilibre séculaire

Cette notion est fondamentale dans notre présente étude, car elle interviendra dans le calcul de l'activité de l' $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et du  $^{226}\text{Ra}$  dans les rejets liquides et l'eau du robinet. Ce type de relation entre activité père et fils intervient quand la demi-vie du noyau père est infiniment plus grande que celle du noyau fils. On peut citer les exemples des relations entre les isotopes, à vie longue, de l'uranium et du thorium et leurs produits de décroissance :

- $^{238}\text{U}$  (4,4  $10^9$  an) /  $^{234}\text{Th}$  (24,1 j)
- $^{226}\text{Ra}$  (1600 an) /  $^{222}\text{Rn}$  (3,8 j)
- $^{232}\text{Th}$  (14  $10^9$  an) /  $^{228}\text{Ra}$  (5,8an)

Si le noyau fils (B) se désintègre beaucoup plus rapidement que le noyau-père (A)

Donc :  $\lambda_B \gg \lambda_A$  c'est à dire  $T_B \ll T_A$ . [23]

1. L'activité du noyau-père sera quasi-constante pendant la croissance de l'activité du noyau-fils.
2. Au bout d'un temps suffisamment grand (mais inférieur à  $T_A$ ), l'activité du noyau-fils devient égale à celle du noyau-père (l'activité du descendant tend vers celle du parent) chaque désintégration d'un noyau produit un autre noyau instable qui se désintègre à son tour, etc.....

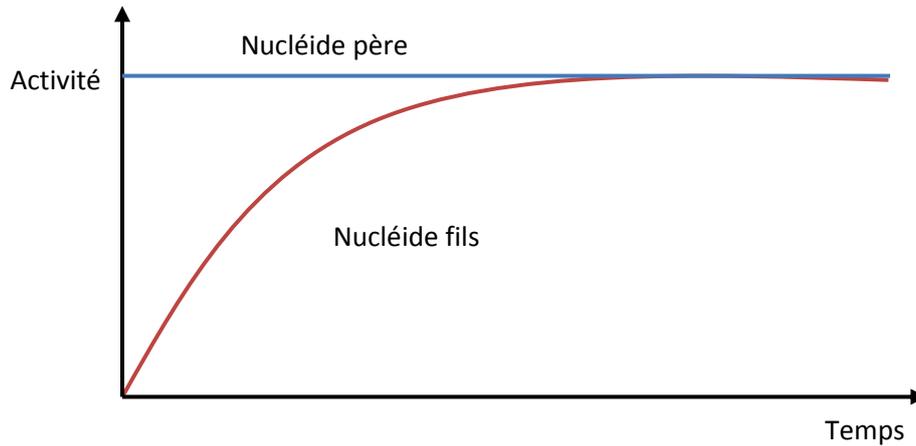


Figure 11: Equilibre séculaire entre le radionucléide père et le radionucléide fils

$$\text{Avec : } \begin{cases} A_B(t) = A_A(0) \cdot (1 - e^{-(\lambda_B - \lambda_A)t}) \\ A_A(t) = A_A(0) \cdot (1 - e^{-\lambda_A t}) \end{cases} \dots \dots \dots (11)$$

Si  $\lambda_B \gg \lambda_A$  et après une durée égale à 7 fois la période du noyau fils permettant l'établissement de l'équilibre séculaire les expressions ci-dessus deviennent :

$$A_B(t) = A_A(0) \dots \dots \dots (12)$$

et

$$A_A(t) = A_A(0) \dots \dots \dots (13)$$

En d'autres termes, les activités du père et du fils deviennent égales. [23]

Ce procédé de calcul est utilisé pour le calcul de l'activité du radium Ra226 à travers la détermination de l'activité des descendants  $^{214}\text{Bi}$  et  $^{214}\text{Pb}$ .

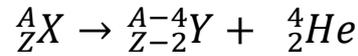
**VI. Modes de désintégrations radioactives**

Lorsqu'ils se transforment, les noyaux radioactifs perdent une partie de leur masse sous forme de particules qui sont émises à de grandes vitesses, et le retour à la stabilité s'effectue par des désintégrations alpha, bêta, capture électronique, ou encore par émission gamma.

**VI.1. La désintégration  $\alpha$**

Ce mode de désintégration est propre aux noyaux instables qui sont trop lourds comme l'uranium et le thorium. Leur instabilité ne tient pas à une mauvaise répartition entre les neutrons et les protons, mais à un excès de nucléons. Le noyau a la possibilité d'éjecter un

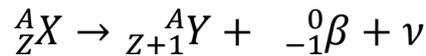
petit noyau dont la formation libère elle-même beaucoup d'énergie : c'est le noyau d'hélium  ${}^4_2\text{He}$  constitué de deux protons et de deux neutrons solidement liés les uns aux autres. Telle est la particule  $\alpha$  caractéristique de ce mode de désintégration. La transformation s'écrit selon la réaction suivante:



### VI.2. La désintégration $\beta^-$

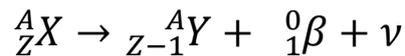
Ce mode de désintégration est propre aux noyaux instables qui manifestent un excès de neutron.

Dans le noyau, un neutron s'est donc transformé en proton, tandis que l'électron négatif qui a été créé est éjecté hors du noyau : c'est la particule  $\beta^-$  qui est accompagnée de l'émission d'un antineutrino (particule de masse et de charge électrique nulle).



### VI.3. La désintégration $\beta^+$

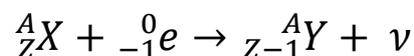
Dans le noyau instable, un proton se transforme en neutron, avec création d'une particule qui doit être nécessairement positive : c'est l'électron positif, ou positon qui va être éjecté hors du noyau et accompagné de l'émission d'un neutrino.



### VI.4. La capture électronique (CE)

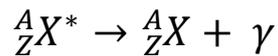
C'est un autre mode de désintégration que subissent les noyaux ayant un excès de protons. Le noyau va arracher l'un des électrons les plus proches du cortège électronique de l'atome d'où le nom donné à ce processus, la capture électronique.

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, et émission d'un neutrino.



### VI.5. L'émission gamma

Lors d'une désintégration radioactive alpha, bêta ou d'une réaction nucléaire, le noyau instable, appelé noyau père, donne un noyau différent appelé noyau fils. Très souvent, le noyau fils issu de la désintégration du noyau père est dans un état momentanément instable, appelé état excité. Il possède un excédent d'énergie. Le retour à l'état fondamental stable de ce noyau excité s'effectue par une libération de l'énergie sous forme de rayonnements dont l'origine est nucléaire.



Ces rayonnements sont assez dangereux et difficiles à arrêter ; on a besoin de plusieurs décimètres de plomb ou plusieurs mètres de béton pour les absorber. On utilise aussi quelques mètres d'eau pour assurer la protection contre les sources extrêmement radioactives comme le combustible usée des réacteurs nucléaires [24].

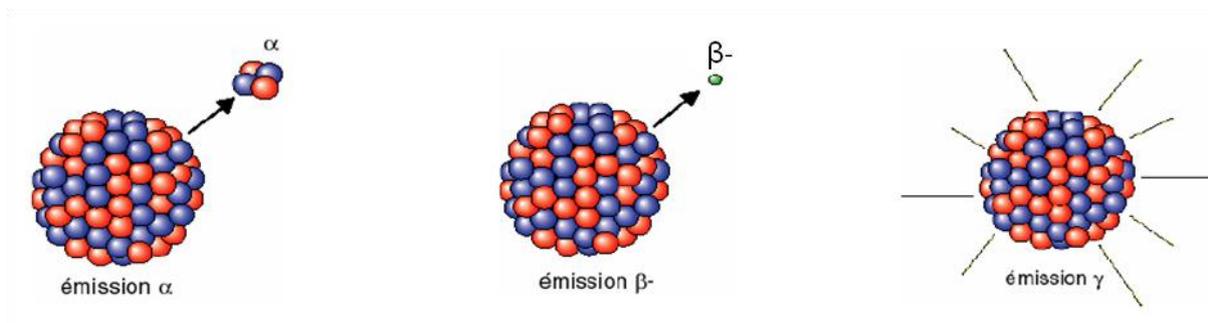


Figure 12: Les différents types de rayonnements

## VII. Radioactivité naturelle

Les radionucléides sont présents naturellement dans l'air, l'eau et le sol. Ils sont mêmes au sein de nos corps.

Chaque jour nous recevons par inhalation et par ingestion des radionucléides dans l'air, la nourriture et l'eau. La radioactivité naturelle existe dans les roches et les sols qui composent notre planète, dans l'eau et les océans ainsi que dans nos maisons et les matériaux de construction [16]. Il y a deux types de radioactivités dans l'environnement:

- Radioactivité primordiale.
- Radioactivité cosmogénique.

### ➤ La radioactivité primordiale

Elle est due à des radionucléides qui existent depuis que le monde et l'univers ont été créés. Ces radio-isotopes présentent des demi-vies de l'ordre de centaines de millions d'années (voir tableau ci-dessous).

**Tableau 2: Radionucléides primordiaux**

Nucléide	Symbole	Demi-vie
Uranium 235	$^{235}\text{U}$	$7,04. 10^8$ ans
Uranium 238	$^{238}\text{U}$	$4,47. 10^9$ ans
thorium 232	$^{232}\text{Th}$	$1,41. 10^{10}$ ans
Potassium 40	$^{40}\text{K}$	$1,28. 10^9$ ans

### ➤ La radioactivité cosmogénique

Le rayonnement cosmique pénètre tout l'espace, la source étant principalement à l'extérieur de notre système solaire. Plusieurs formes de radiations existent allant des particules lourdes aux photons et muons à haute énergie.

**Tableau 3: Radionucléides cosmo géniques**

Nucléide	Symbole	Demi-vie
Carbone 14	$^{14}\text{C}$	5730 ans
Tritium	$^3\text{H}$	12.3 ans
Béryllium	$^7\text{Be}$	53028 jours

## VIII. Les séries de désintégration naturelle de l'uranium et du thorium

### VIII.1. L'uranium et ses séries de désintégration

L'uranium est un radioélément qui possède trois principaux isotopes naturels :  $^{234}\text{U}$  (0.005%),  $^{235}\text{U}$  (0.72%),  $^{238}\text{U}$  (99.275%). Ces isotopes naturels se désintègrent principalement par rayonnement alpha et gamma. Il a été découvert dans les phosphates algériens en 1934 [25]. Le dosage de ce dernier dans les phosphates du bassin de Djebel Onk en 1985-1987 par l'EREM a permis de mettre en évidence la présence de cet élément avec une teneur moyenne de 44 ppm [8]

Ce qui donne une quantité supérieure à 25000 t qui peut être récupérée après transformation.

### VIII.1.1. La série de désintégration de l' $^{238}\text{U}$

La série de  $^{238}\text{U}$  contient 14 radionucléides (figure 13). Parmi ces radionucléides, 6 ne sont pas décelables en raison de l'absence d'émissions gamma ou en cas d'intensités d'émission très faibles. Cette famille contient 3 groupes, le groupe de l'uranium, le groupe de  $^{222}\text{Rn}$  et le groupe de  $^{210}\text{Pb}$ . Compte tenu des propriétés chimiques différentes entre les thoriums et les uraniums, il est possible de rencontrer une rupture de chaîne au niveau des thoriums. Toutefois, les périodes courtes de  $^{234}\text{Th}$  (24,1 jours) et de  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  (1,2 min) permettent un retour rapide à l'équilibre avec  $^{238}\text{U}$ , mais ceci n'est pas le cas de  $^{234}\text{U}$  ni de  $^{230}\text{Th}$  qui ont des périodes très longues. Il est donc possible d'observer dans certain cas des activités différentes entre le précurseur,  $^{238}\text{U}$  et ses descendants  $^{234}\text{U}$ ,  $^{238}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ . Le  $^{222}\text{Rn}$ , descendant du  $^{226}\text{Ra}$  est un gaz qui diffuse lentement au travers des échantillons, et de ce fait provoque un déséquilibre radioactif avec ses descendants.

Le choix d'un conteneur étanche et de géométrie bien définie, permet après environ un mois de stockage de l'échantillon d'analyse de rétablir cet équilibre entre  $^{226}\text{Ra}$  et ses descendants jusqu'au groupe du  $^{210}\text{Pb}$ . Les descendants de  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$ , présentent beaucoup d'émissions gamma qui permettent de déterminer l'activité du  $^{222}\text{Rn}$ . Le  $^{214}\text{Pb}$  est mesurable par spectrométrie gamma sur ses raies de 242 keV et 352 keV.

Les autres radionucléides de la chaîne ont en général suffisamment de raies gamma pour pouvoir être déterminés correctement [26].

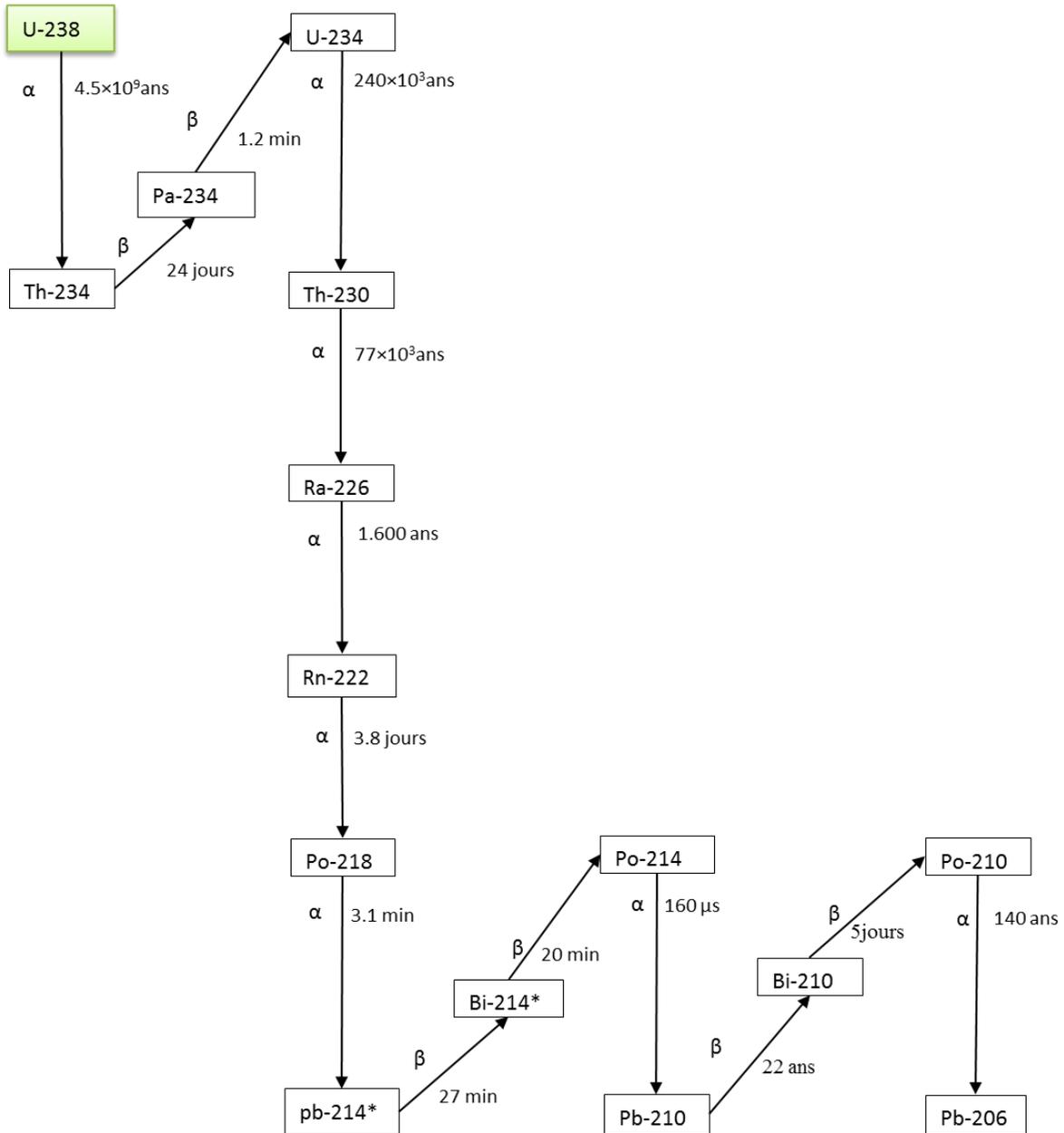


Figure 13: Séries radioactives naturelles de l'Uranium 238.

VIII.1.2. Série de désintégration de l'uranium 235

La famille de  $^{235}\text{U}$  est présentée sur la figure 14 et comporte 13 descendants. Tout comme la famille de  $^{238}\text{U}$ , les uraniums et les thoriums présentant des propriétés chimiques différentes, on peut aussi avoir une rupture de chaîne entre  $^{235}\text{U}$  et  $^{231}\text{Th}$  au cours du temps, due à des lessivages successifs. Par conséquent, il est possible de ne pas trouver la même activité entre  $^{235}\text{U}$  et  $^{231}\text{Pa}$  et ses descendants. Compte tenu de la faible période de  $^{231}\text{Th}$  (1,06 j), celui-ci revient rapidement à l'équilibre radioactif avec son précurseur  $^{235}\text{U}$ . Cette

chaîne radioactive peut être, à l'échelle géologique, regroupée en un seul groupe, le groupe de  $^{231}\text{Pa}$ . L' $^{235}\text{U}$  est quant à lui rattaché au groupe des uraniums en raison de ses propriétés chimiques.

La chaîne de  $^{235}\text{U}$  peut donc être représentée de la façon suivante: Les radionucléides suivants :  $^{227}\text{Ac}$ ,  $^{231}\text{Th}$ ,  $^{231}\text{Pa}$ ,  $^{227}\text{Fr}$ ,  $^{211}\text{Bi}$ ,  $^{211}\text{Po}$  et  $^{207}\text{Tl}$  sont difficilement quantifiables par spectrométrie gamma, car ils possèdent des raies gamma avec des intensités d'émissions très faibles ou bien interférant avec celles d'autres radionucléides de mêmes énergies mais plus intenses ce qui implique une grande incertitude sur la capacité à déterminer leur activité. Il est alors possible que l'on ne puisse donner qu'une limite de détection pour ces radionucléides, les autres devant pouvoir être quantifiés de façon plus précise [26].

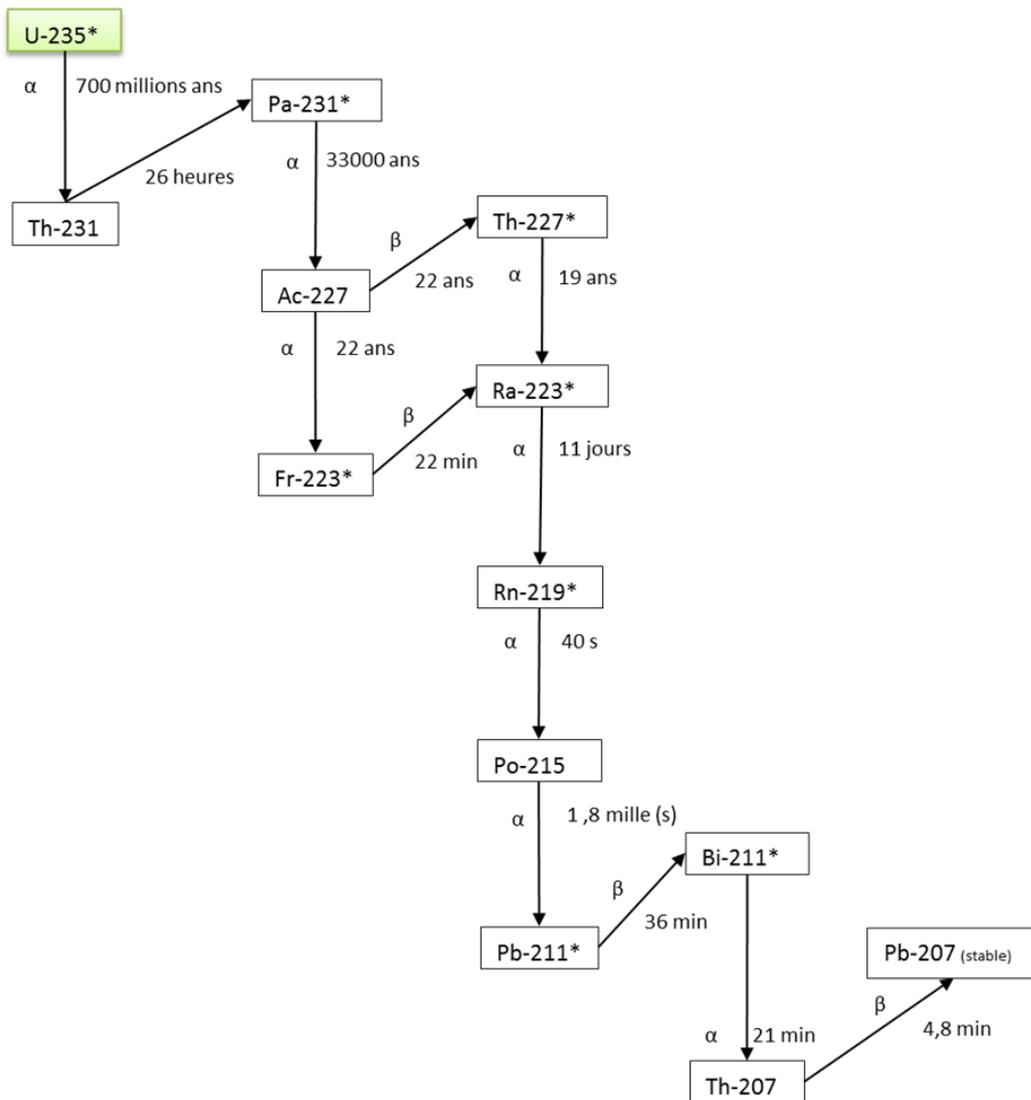


Figure 14: Séries radioactives naturelles de l'Uranium 235

## VIII.2. Série de désintégration du $^{232}\text{Th}$

La chaîne radioactive naturelle de  $^{232}\text{Th}$  ne présente qu'un seul groupe. Même si leurs propriétés chimiques sont différentes, l'ensemble des radionucléides se met rapidement à l'équilibre, compte tenu des courtes périodes des descendants, comparativement aux échelles géologiques.

De ce fait, cette chaîne est la plus simple à traiter, même si certains de ces radionucléides ne sont pas faciles à déterminer par spectrométrie gamma. Ces difficultés sont dues aux faibles intensités d'émission gamma. C'est le cas de  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Th}$ ,  $^{220}\text{Rn}$  et  $^{216}\text{Po}$ . Pour ces radionucléides, une limite de détection pourra être donnée. Pour les autres radionucléides mesurables, on s'assurera qu'ils sont à l'équilibre radioactif, aux incertitudes près, y compris pour  $^{208}\text{Tl}$  qui présente un rapport d'embranchement de 35,93 % avec  $^{212}\text{Bi}$  [26].

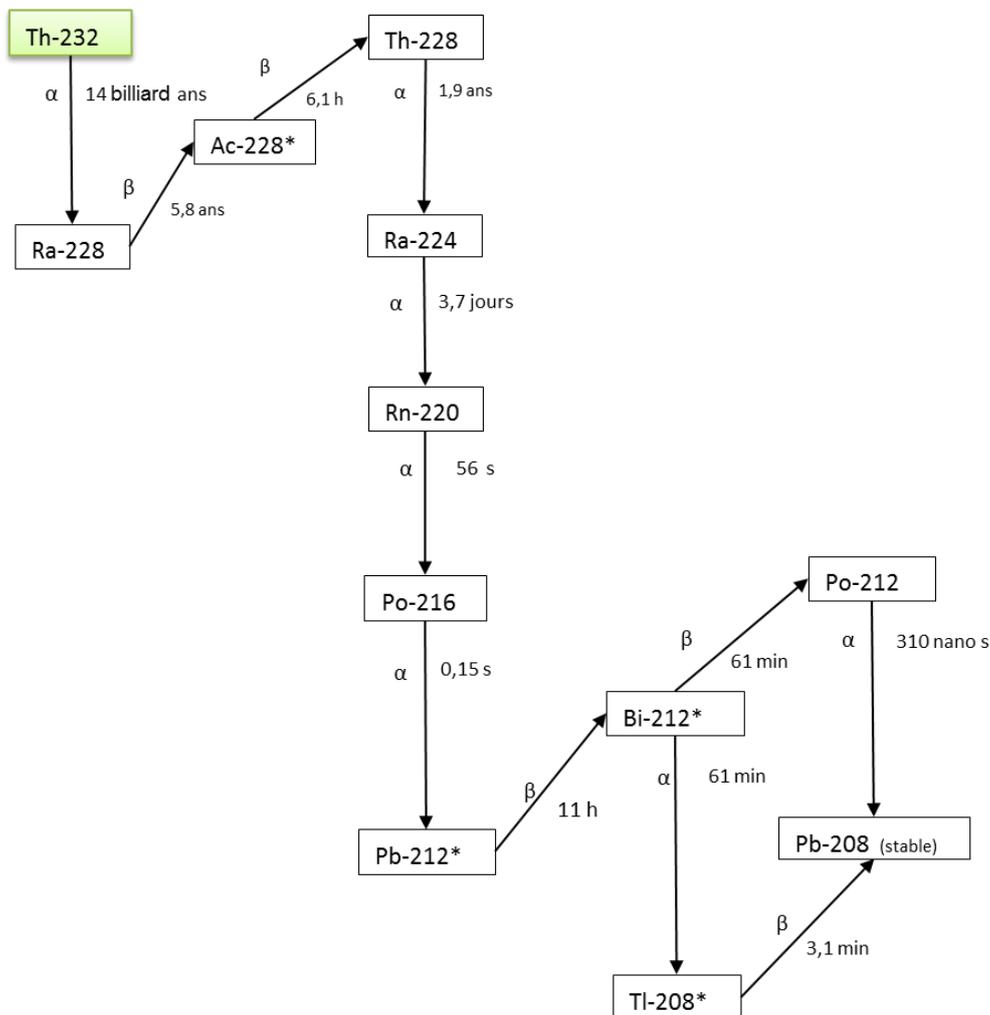


Figure 15: Séries radioactives naturelles du thorium 232

## **IX. La Radioactivité Naturelle technologiquement Renforcée (RNR).**

La radioactivité naturelle est présente partout autour de nous que ce soit dans les organismes vivants ou non. Des évènements naturels comme les éruptions volcaniques contribuent fortement à la dispersion de l'irradiation sur la Terre et dans l'atmosphère. Des renforcements locaux de la radioactivité naturelle de nature géologique et hydrogéologique sont aussi observés dans certaines parties du globe.

Quand la biomasse végétale et les matériaux fossiles, y compris l'eau, sont extraits, exploités, et transformés, alors l'environnement de surface, les populations humaines et animales, les ressources aquatiques superficielles et le compartiment atmosphérique sont alors surexposés par rapport à la situation originelle. Il s'agit alors de la radioactivité naturelle technologiquement renforcée.

La totalité des radioactivités naturelles technologiquement renforcées provient des industries extractives des minerais comportant les étapes successives de séparation, d'épuration, de transformation. C'est le cas de l'industrie d'enrichissement du minerai de phosphate qui engendre des déchets liquides et solides pouvant accroître la concentration des éléments radioactifs naturels du site d'exploitation.

La radioactivité naturelle technologiquement renforcée engage des doses qui peuvent par accumulation devenir comparables aux doses de radioactivité artificielle émises par les pratiques nucléaires non accidentelles. Elle génère des volumes de déchets ou de matériaux dont l'ordre de grandeur commun est le million de tonnes et la demi-vie le millier ou le milliard d'années. La vie des déchets radioactifs naturels est globalement beaucoup plus longue que celle des déchets radioactifs artificiels. [27]

## **X. Effets biologiques de la radioactivité (cours radioactivité)**

### **X.1. Sur l'être humain**

En traversant le corps, les rayonnements radioactifs provoquent des destructions cellulaires. A faible dose, ces rayonnements sont responsables d'une augmentation des cancers et d'anomalies génétiques.

- On parle d'irradiation lorsqu'un organisme se trouve à proximité d'une source radioactive. Il reçoit alors une partie du rayonnement émis par la source. Il y a contamination interne ou externe lorsque les produits radioactifs sont absorbés par les voies digestives ou respiratoires.

Ils peuvent alors se désintégrer au sein même de l'organisme.

- **Ionisation** : il y a ionisation lorsque l'énergie du rayonnement est suffisante pour arracher des électrons aux atomes et molécules des cellules, ce qui entraîne des réactions chimiques inhabituelles  $\Rightarrow$  les cellules vont muter, voire même, mourir.

➤ **pour les cellules mutées (irradiation globale) :**

- Si elles sont éliminées par le système immunitaire, l'organe irradié ne sera pas affecté.
- Si elles ne sont pas éliminées, il peut se développer une tumeur cancéreuse (principalement : de la thyroïde, des os, du sang, du poumon, du sein). Dans le cas de cellules reproductrices, des anomalies génétiques peuvent être transmises à la descendance, avec risques de malformations, de troubles mentaux et de retards de croissance. Ces effets ont des conséquences à long terme ("effets différés").

➤ **pour les cellules mortes (irradiation globale) :**

- Si les cellules mortes sont peu nombreuses, le fonctionnement de l'organe irradié ne sera pas affecté, et les cellules mortes seront petit-à-petit évacuées et remplacées par l'organisme.
- Si elles sont plus nombreuses, l'organisme irradié va souffrir de symptômes persistants : brûlure, perte de cheveux, cataracte, troubles digestifs, affaiblissement des défenses immunitaires... Une hospitalisation est alors indispensable, et peut mener à la guérison si la dose absorbée n'est pas trop importante.
- Si elles sont encore plus nombreuses, l'organe irradié peut être biologiquement détruit, ou cesser de fonctionner, entraînant éventuellement la mort.

- **Danger des rayonnements** : le danger augmente avec l'activité A de la source radioactive, la proximité de la source, la durée d'exposition et le type de radioactivité, le type de tissu (les plus fragiles sont la peau, l'intestin, la moelle osseuse, spermatozoïdes, ovules).

Un rayonnement est d'autant plus dangereux que l'énergie qu'il transporte est élevée.

On appelle **dose absorbée** l'énergie reçue par kg de matière vivante. L'unité SI est le

$$\text{Gray} \Rightarrow 1\text{Gy} = 1 \text{ J.Kg}^{-1}$$

## X.2. Sur l'environnement

Les animaux et les végétaux, tout comme les êtres humains, peuvent être affectés par les radiations.

Ils absorberont certaines doses qui seront entreposées dans leur organisme. Le danger réside surtout dans le fait qu'il risque d'y avoir accumulation de ces doses par l'intermédiaire

de la chaîne alimentaire. L'homme étant le dernier maillon de cette chaîne, il risque d'en être le plus gravement touché.

Ainsi, les radiations peuvent occasionner des effets néfastes sur l'environnement. Mais ce dernier peut également avoir un effet sur les radiations. Le vent, les courants marins et la migration des animaux permettent la dispersion des effluents radioactifs. Ceux-ci deviennent alors incontrôlables pour préserver le bien-être de l'homme.

## *Chapitre III : Spectrométrie gamma*

---

## Introduction

Ce chapitre aborde la notion de spectrométrie des photons gamma qui repose dans une première étape sur le dépôt d'énergie des photons dans un milieu détecteur. L'énergie est transférée à travers principalement trois modes d'interactions. Ce milieu sera dans notre cas le cristal de germanium. La spectrométrie n'est pas un simple comptage des photons gamma émis par un radionucléide. La technique permet d'obtenir une représentation graphique en histogramme du spectre énergétique gamma émis par une source radioactive. Les raies gamma émises suite à une transition énergétique du noyau radioactif se traduisent par des pics issus de l'interaction photoélectrique des gammas avec le milieu détecteur. L'établissement d'une corrélation (étalonnage) entre les pics photoélectriques mesurés et les raies gamma permettra d'identifier le radionucléide ainsi que son activité.

### I. Interaction du rayonnement gamma avec la matière

Les photons gamma sont des particules neutres qui ne peuvent être détectés que s'ils s'interagissent avec la matière d'un détecteur en cédant tout ou partie de leur énergie à un ou plusieurs électrons du milieu. Le type d'interaction dépend du matériau traversé et de l'énergie du photon incident. Il peut se produire trois processus d'interaction dont l'occurrence est régie par des lois statistiques :

#### Effet photoélectrique

Appelé aussi effet d'absorption total, ce type d'interaction conduira à la disparition totale du photon après son interaction avec le cortège électronique de l'atome, et l'apparition d'un électron éjecté des couches électroniques profondes de l'atome. Cet électron est généralement libéré de la couche K. [28]. Il emporte une énergie cinétique  $E_{e^-}$  qui est égale à l'énergie du photon incident ( $E_\gamma$ ) diminuée de l'énergie de liaison de l'électron sur sa couche ( $E_K$ ). L'atome se retrouve donc ionisé. Le réarrangement électronique instantané provoque soit un rayonnement X de fluorescence caractéristique de l'atome (qui est généralement absorbé dans le Ge), soit, plus rarement, une émission d'un électron Auger [29].

Etat initial: un photon  $\gamma$  d'énergie  $E_\gamma$ .

Etat final: un électron d'énergie cinétique  $E_{e^-} = E_\gamma - E_K \dots \dots \dots (14)$ ,

un photon X d'énergie  $E_K$ .

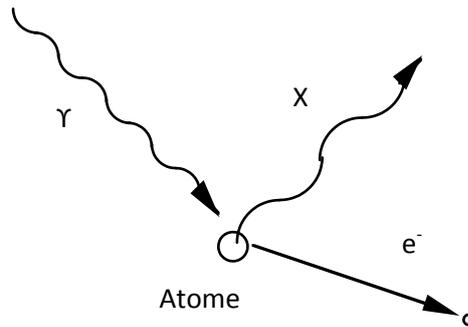


Figure 16: Schéma de l'interaction photoélectrique

### Diffusion Compton

C'est un choc de nature élastique sur un électron du cortège électronique de l'atome. Lors d'une interaction Compton, le photon incident d'énergie  $E_\gamma$  perd une partie de son énergie [30] qui est transférée à un des électrons de l'atome. Le plus souvent, cette interaction se produit avec les électrons des couches externes de l'atome (les moins liés) car ils sont les plus nombreux. On considère donc ces électrons comme libres et initialement au repos.

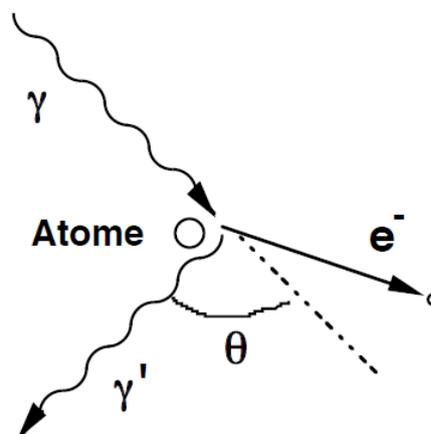


Figure 17: Schéma de l'interaction Compton

### Création de paire

Il est nommé aussi processus de matérialisation du photon gamma. Dans ce processus, le photon d'énergie supérieure à 1022 keV va disparaître pour créer une paire électron/ positron comme le montre la figure ci-dessous. Le positron est ralenti dans le matériau traversé suite aux collisions multiples et s'annihile à son tour pour produire deux photons de 511 keV [30] émis dans le sens opposé.

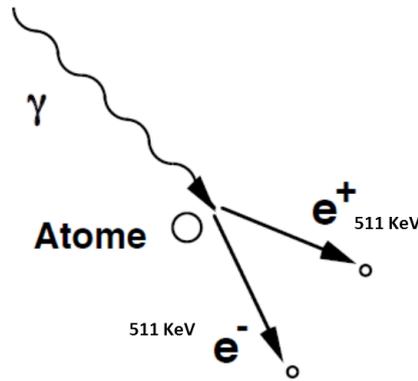


Figure 18: Schéma de création de paire

Etat initial : un photon  $\gamma$  d'énergie  $E_\gamma$

Etat final : un électron et un positron d'énergie cinétique totale :

$$E_{e^-} + E_{e^+} = E_\gamma - 2m_0c^2 \dots \dots \dots (15)$$

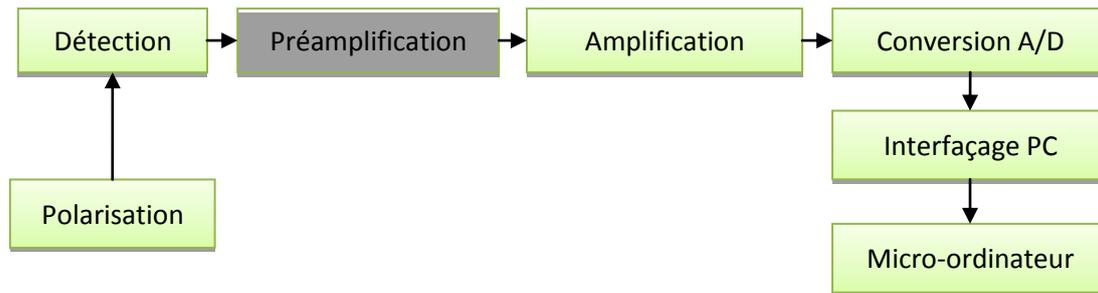
La création de paires ne pourra donc avoir lieu que si  $E_\gamma \geq 2m_0c^2$

Remarque : dans cette formule on néglige l'énergie de recul prise par le noyau [28]

Les trois types d'interaction décrits peuvent se produire dans les détecteur Ge utilisé pour détecter les photons  $\gamma$ . Seule la création de paire possède un seuil en énergie et ne peut se produire que pour des photons  $\gamma$  d'énergie supérieure à deux fois l'énergie de masse d'un électron ( $2 \times 0.511 \text{ MeV} = 1.022 \text{ MeV}$ ). L'importance relative de ces trois types d'interactions dépend de la nature du détecteur employé et de l'énergie du rayonnement  $\gamma$ .

## II. Mesure des photons gamma

Un ensemble de fonctions électriques et électroniques sont nécessaires pour traduire l'énergie déposée du photon gamma dans le détecteur en un histogramme donnant le nombre de photons détectés en fonction de l'énergie des photons. Il s'agit des fonctions de détection, de pré-amplification, d'amplification, de conversion des impulsions analogiques en impulsions numériques et finalement une multifonction permettant de visualiser la distribution de l'énergie des photons en histogramme assurée par un logiciel. Une haute tension est nécessaire pour polariser le détecteur (fig19).



**Figure 19: processus d'analyse par spectrométrie gamma**

### II.1. Le détecteur Germanium

La fonction d'un détecteur utilisé dans le domaine de la spectrométrie est de produire une impulsion électrique proportionnelle à l'énergie déposée. L'impulsion générée après application d'un champ électronique, fait suite à la conversion de l'énergie des photons gamma en un grand nombre d'électrons secondaires. Il s'agit de la première étape du processus de spectrométrie gamma. Si ce dernier est un détecteur de germanium, un refroidissement du cristal à la température de l'azote liquide est nécessaire [31])

### II.2. La préamplification

Le premier objectif du préamplificateur est de réaliser un couplage optimal entre la sortie du détecteur et le système électronique associé. Il doit aussi améliorer le rapport signal sur bruit car le signal engendré par la détection du photon est de l'ordre de quelques dizaines de mVolts. Pour éviter l'affaiblissement à travers le câble, la préamplification est réalisée dans le dispositif de détection. Il n'y a donc pas de câble entre le détecteur et le préamplificateur.

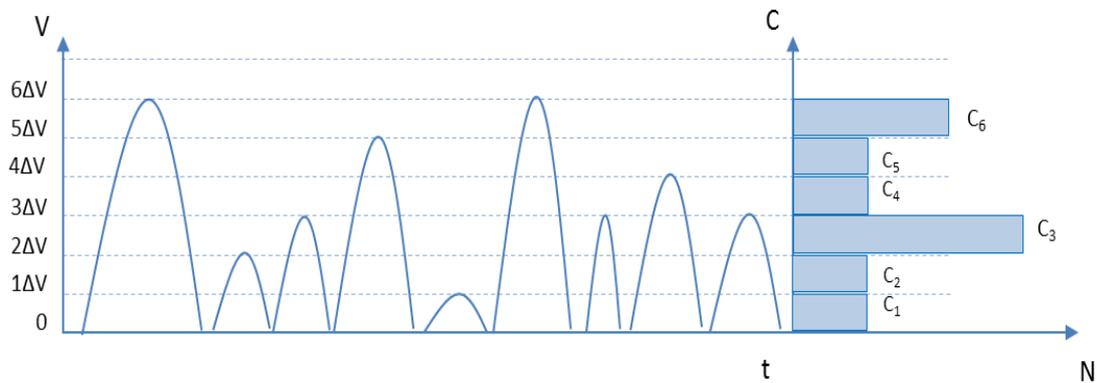
### II.3. L'amplification

L'amplification est une fonction très importante du processus d'analyse. Elle doit présenter une très bonne linéarité dans toute la gamme de mesure, et le signal de sortie ne doit pas dépasser 10 volts. Le signal d'entrée peut être amplifié jusqu'à 1000 fois. Une autre fonction de l'amplificateur et non des moindres est la mise en forme de l'impulsion délivrée par le préamplificateur. Cette opération permet une meilleure détermination de la hauteur de l'impulsion qui est l'information principale du processus.

### II.4. La représentation spectrale (spectrométrie) des photons

La représentation spectrale des impulsions issues de l'amplificateur est réalisée à l'aide de trois fonctions principales qui sont : la conversion du signal analogique en un signal numérique (CAN), un adaptateur entre l'électronique de détection et le PC, et un logiciel d'affichage du spectre sur PC. Les impulsions ayant une amplitude entre  $V$  et  $V + \Delta V$  sont

stockées dans le canal approprié comme le montre la figure ci-dessous. Le nombre de canaux affiché dépend du gain de conversion fixé. Pour notre application, le nombre de canaux est fixé à 8192.



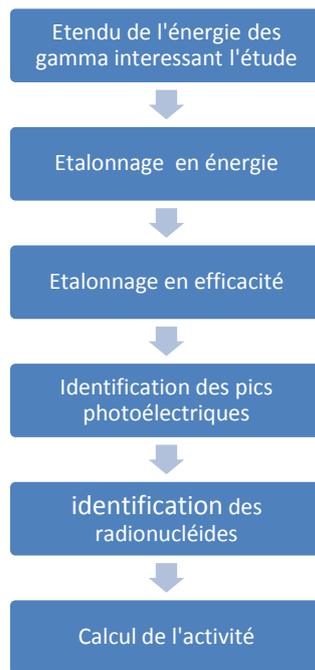
**Figure 20: La représentation spectrale (spectrométrie) des photons**

### II.5. Logiciel de traitement de spectre

En plus de la visualisation du spectre sur PC, ce logiciel permet de déterminer avec une très grande précision l'identité et l'activité du radionucléide à travers respectivement l'identification des pics photoélectrique et la détermination de leurs aires qui représente le nombre de photons détectés à travers le processus d'interaction photoélectrique. A travers des traitements particuliers, ce logiciel permet de distinguer de pics presque confondus.

### III. Détermination de l'activité d'un radionucléide

L'activité d'un radionucléide ne peut être déterminée qu'après un étalonnage adéquat en énergie et en efficacité de la chaîne de spectrométrie. Le processus de détermination de l'activité est représenté par un ensemble d'opérations successives représentées dans la figure ci-après.



**Figure 21: Procédure de mesure de l'activité d'un radionucléide**

### III.1. Etalonnage en énergie

L'objectif de cette opération est d'obtenir une relation entre le numéro du canal et l'énergie des photons. Pour l'établir, une source multi-gamma comme l'Europium  $^{152}\text{Eu}$  couvrant l'étendu de mesure est utilisée [23]. Cette opération permet d'identifier l'énergie du pic, et à l'aide de table d'identifier le ou les radionucléides présents dans la source. En raison de la quasi parfaite linéarité du convertisseur CAN, la relation entre l'énergie et le numéro du canal est de la forme :  $E = aC + b$

Avec E : énergie des photons ; C : numéro du canal ; a et b des constantes

### III.2. Etalonnage en efficacité

Le but de l'étalonnage en efficacité est d'obtenir une relation entre le comptage des photons d'énergie E (ex l'aire du pic photoélectrique) et l'activité de la source Etalon. L'efficacité de l'installation de mesure dépend de la géométrie de la source et du détecteur, de l'énergie des photons et de la distance source/Détecteur. Elle est donnée par l'expression suivante

$$\xi(E) = \frac{\text{taux de comptage des photons d'énergie } E \text{ (aire du pic d'énergie } E)}{\text{l'activité du radionuclide exprimée en photons d'énergie } E/\text{sec}} \dots \dots \dots (16)$$

Le détecteur germanium utilisé dans notre étude présente une fenêtre en. Cette fenêtre permet d'accroître le rendement de détection pour les photons gamma d'énergie faible et les photons X. La courbe d'efficacité présente l'allure de la figure ci-dessous. On relève deux zones distinctes. Dans la zone 1 au-dessous d'environ 120 keV, elle est maximum et constante. Dans la zone 2, l'efficacité décroît avec l'augmentation de l'énergie des photons. [23]

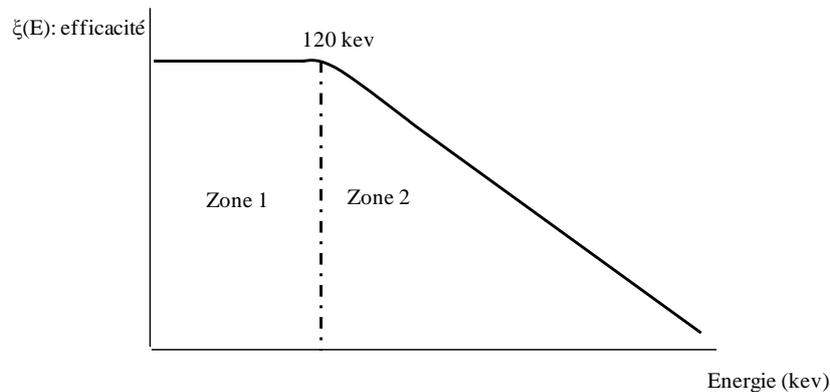


Figure 22: Evolution de l'efficacité en fonction d'énergie de photon

### III.3. Détermination de l'activité d'un radionucléide

Connaissant l'efficacité de l'installation de mesure pour une géométrie définie et des photons d'énergie  $E$ , on peut déterminer l'activité d'un radionucléide à l'aide de l'expression suivante :

$$A = \frac{\text{Aire du pic photoélectrique d'énergie } E}{\xi(E) \cdot t_m \cdot Y(E)} \dots \dots \dots (17)$$

Avec :

- $t_m$  : durée de l'acquisition de spectre
- $Y(E)$  : probabilité d'émission (taux de branchement) des photons gamma d'énergie  $E$

### Cas des faibles activités

Lorsque l'activité mesurée est à des niveaux comparables au bruit de fond émis par l'environnement de détection, il est nécessaire de soustraire le comptage du bruit de fond du comptage total.

### III.4. Mesure de l'activité du $^{226}\text{Ra}$

Le radium 226 appartient à la série de l'uranium 238 (voir chapitre précédent). Il existe plusieurs méthodes pour déterminer son activité. Cependant, celle qui fait intervenir

l'équilibre séculaire est la plus usitée. L'équilibre séculaire est atteint en piégeant le gaz  $^{222}\text{Rn}$  pendant 28 à 30 jours c'est-à-dire environ 7 à 8 fois la période du Radon. Ce procédé égalise les activités de la série de désintégration et principalement les activités du  $^{226}\text{Ra}$  et de ses fils qui sont  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$ . Ces deux derniers radionucléides affichent des pics photoélectriques assez conséquents. Le tableau suivant renferme les raies gamma utilisées pour la détermination de l'activité du  $^{214}\text{Pb}$  et du  $^{214}\text{Bi}$ .

**Tableau 4: Caractéristique nucléaire du  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$**

Radionucléides	Energie (kev)	Probabilité d'émission (%)
$^{214}\text{Pb}$	351,93	37,6
$^{214}\text{Bi}$	609,3	46,1

Une fois les activités de ces deux radionucléides calculées à l'aide de l'équation ci-dessus, l'activité du  $^{226}\text{Ra}$  est estimée comme étant la moyenne des activités du  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$ .

$$A(^{226}\text{Ra}) = \frac{A(^{214}\text{Pb}) + A(^{214}\text{Bi})}{2} \dots \dots \dots (18)$$

Le résultat final appelé aussi mesurande s'exprimera en termes d'activité volumique [Bq/l]. Ainsi l'activité volumique du  $^{226}\text{Ra}$  aura comme expression suivante :

$$A_v(^{226}\text{Ra}) = \frac{A(^{214}\text{Pb}) + A(^{214}\text{Bi})}{2 \cdot v} \dots \dots \dots (19)$$

Où  $v$  représente le volume du liquide analysé.

### III.5. Détermination de l'incertitude associée à l'activité du $^{226}\text{Ra}$

L'incertitude est un paramètre associé au mesurande qui est dans notre cas l'activité volumique [32]. Elle caractérise la dispersion des valeurs attribuées au mesurande.

#### III.5.1. Sources d'incertitude

L'incertitude affectant un résultat peut être la conséquence de plusieurs sources possibles dont par exemple :

- L'échantillonnage
- La préparation de l'échantillon à l'analyse
- Les effets de matrice dans les mesures spectrométrique
- Les interférences entre les raies gamma
- Etc.

Toutes ses sources d'incertitudes doivent être prises en considération pour la détermination de l'incertitude finale. Ces diverses sources sont appelées composantes de l'incertitude finale dénommée  $u_c(A_v)$ . Elle est déterminée à l'aide de la loi de propagation de l'incertitude [33] En général, pour les études analytiques semblables à la nôtre, l'incertitude associée au résultat final est l'incertitude dite élargie  $U$ . Elle correspond à un niveau de confiance approximatif de 95%.  $U$  est obtenu en multipliant  $u_c$  par 2.

### III.5.2. Processus d'estimation de l'incertitude

Le schéma suivant montre le processus à suivre pour estimer l'incertitude  $U (A_v)$ . il est constitué de quatre étapes majeures :

1. Définir le mesurande : dans notre cas le mesurande est l'activité volumique  $A_v$ . la relation entre  $A_v$  et les grandeurs mesurées doit être parfaitement définie.
2. Identifier les sources d'incertitude : Etablir la liste des sources éventuelles d'incertitude
3. Quantifier les composants de l'incertitude : il faudra mesurer ou estimer la valeur de la composante de l'incertitude associée à chaque source potentielle.
4. La contribution de chaque source d'incertitude doit être exprimée sous forme d'écart type et combinée selon les règles de manière à fournir une incertitude type composée.

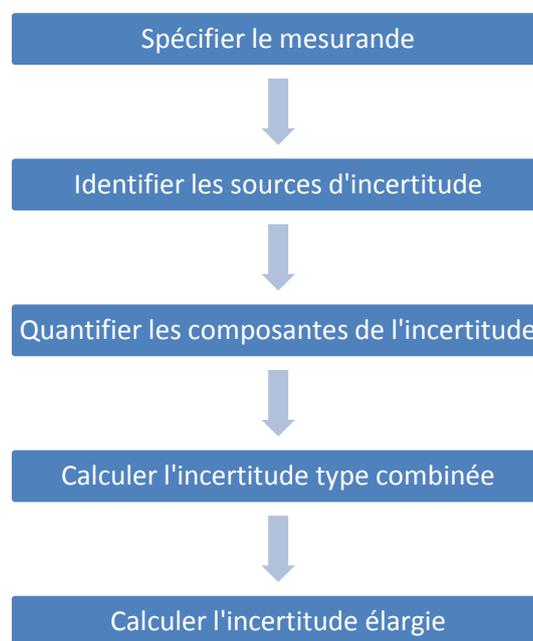


Figure 23: Le processus de l'estimation de l'incertitude associée au mesurande

### III.6. Application du processus à la détermination de l'activité volumique

#### Etape 1 : le mesurande est l'activité volumique $A_v$

Son expression en fonction des valeurs mesurées est la suivante :

$$A_v(^{226}Ra) = \frac{A(^{214}Pb) + A(^{214}Bi)}{2 \cdot v} \dots \dots \dots (20)$$

Avec :

$$A(^{214}Pb) = \frac{N(351,9kev) - B(351,9kev)}{\xi(351,9kev) \cdot t_m \cdot \gamma(351,9kev)} \dots \dots \dots (21)$$

Et

$$A(^{214}Bi) = \frac{N(609,3kev) - B(609,3kev)}{\xi(609,3kev) \cdot t_m \cdot \gamma(609,3kev)} \dots \dots \dots (22)$$

Où :

- N (351,9 kev) représente le comptage sous le pic photoélectrique d'énergie 351,9 kev émis par le  $^{214}Pb$  dans les conditions de mesure de l'échantillon
- B (351,9 kev) représente le bruit c'est-à-dire le comptage émanant de l'environnement du détecteur

#### Etape 2 : identifier les sources d'incertitude

- Incertitude sur le comptage N et le bruit B de l'installation de mesure
- Incertitude sur la valeur de l'efficacité
- Incertitude sur le temps d'acquisition du spectre gamma
- Incertitude sur le volume du liquide
- Incertitude sur la probabilité d'émission

Ces sources d'incertitude peuvent être représentées selon le diagramme de cause à effet (appelé aussi diagramme d'Ishikawa) ci-dessous :

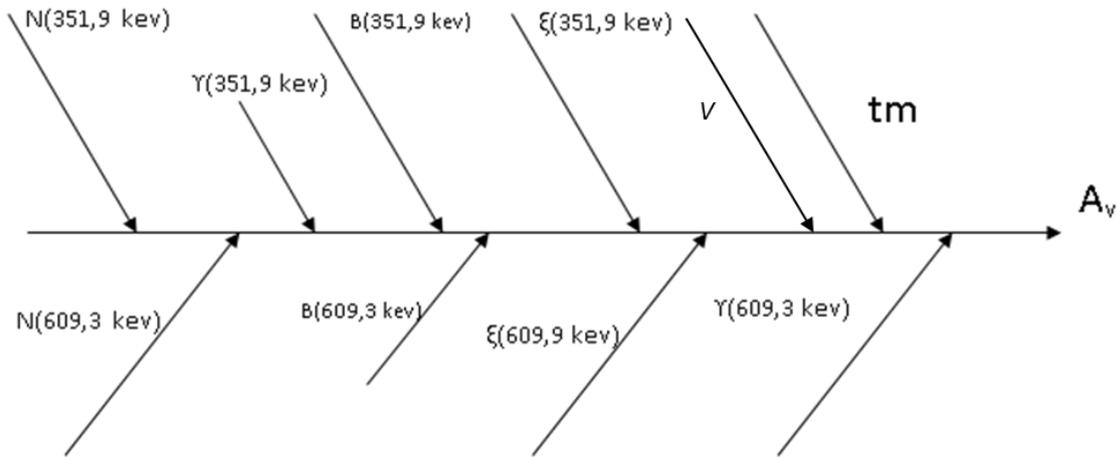


Figure 24: diagramme de cause à effet

**Etape 3 : quantifier les composantes de l'incertitude**

- L'incertitude sur les comptages est donnée par le logiciel utilisé pour le traitement du spectre
- L'incertitude sur l'efficacité  $\sigma_a$  [34] est donnée par l'expression suivante :

$$-\sigma_a^2 = \frac{\sum [(\epsilon_i - f_i)/f_i]^2 - (\sum (\epsilon_i - f_i)/f_i \sum (\epsilon_i - f_i)/f_i) / N_a}{N_a - 1} \dots \dots \dots (23)$$

Où :  $\epsilon_i$  représente l'efficacité mesurée pour la valeur de l'énergie  $E_i$

$f_i$  est l'efficacité calculée en utilisant une approche quadratique

$N_a$  est le nombre de point expérimentaux

- L'incertitude sur la probabilité d'émission est très faible donc négligeable
- Incertitude sur le volume du liquide: pour atteindre une incertitude très basse, le liquide a été pesé afin de bénéficier de la faible reproductibilité relative de la balance ; elle est de l'ordre de 0,01 g. La masse du liquide étant d'environ 450g, l'incertitude relative est donc très faible, elle est évaluée à environ 0.002% donc très faible.

**Etape 4 : Règles de calcul de l'incertitude composée**

Pour une expression sous forme de somme ou de soustraction  $y = x_1 + x_2$

Alors 
$$\sigma(y) = (\sigma^2(x_1) + \sigma^2(x_2))^{1/2}$$

Pour une expression de y sous la forme de multiplication ou division de variable  $x_i$  , l'incertitude de y prendra la forme suivante :

$$\frac{\sigma(y)}{y} = \sqrt{\left(\frac{\sigma(x_1)}{x_1}\right)^2 + \left(\frac{\sigma(x_2)}{x_2}\right)^2} \dots \dots \dots (24)$$

#### Etape 5 : calcul de l'incertitude élargie

L'étape finale consiste à multiplier l'incertitude type composée par le facteur d'élargissement  $k$  choisi de manière à obtenir une incertitude élargie. Dans la plupart des cas il est recommandé de fixer la valeur  $k$  à 2.

#### IV. Notion d'Activité minimum détectable (MDA)

La limite de détection (LD) fixe le seuil en dessous duquel les équipements de mesure ne sont plus assez sensibles pour l'échantillon. Pour une énergie gamma, l'expression de LD est donnée par l'expression suivante :

$$LD = 2,71 + 3,27 * \sqrt{(airedupic)^2} \dots \dots \dots (25)$$

L'activité minimale détectable est calculée selon l'expression suivante :

$$MDA = \frac{LD}{\xi(E) \cdot \gamma(E) \cdot t_m \cdot V} \dots \dots \dots (26)$$

## *Chapitre IV : Partie expérimentale*

---

## I. Echantillonnage

L'échantillonnage est une phase importante du processus analytique, car il doit répondre à l'objectif recherché de l'analyse. Pour le cas de notre étude, il s'agit de savoir si les rejets liquides n'apportent pas une pollution radioactive au milieu dans lequel ils sont versés suite aux divers traitements subit par le minerai de phosphate pour son enrichissement. Les échantillons analysés doivent être représentative du milieu de prélèvement. Pour cela, quatre milieux de prélèvement ont été choisis :

- ✓ L'eau de forage qui alimente l'usine de traitement de phosphate
- ✓ L'eau de l'épaississeur qui est rejeté par l'usine
- ✓ L'eau de robinet de la ville de Bir-El-Ater voisine de l'usine
- ✓ L'eau de robinet de la région d'Alger

A travers ce protocole de prélèvement, il s'agit de savoir :

1. Si le processus d'enrichissement de phosphate n'engendre pas un accroissement de la radioactivité du liquide rejeté et de ce fait une modification de l'équilibre radioactif naturel du milieu.
2. Si la présence des mines de phosphate dans la région n'affecte pas le niveau de radioactivité des eaux de forage.

Les prélèvements ont été effectués dans des bouteilles en plastique de 1,5 litres préalablement lavés à l'eau distillé, séchés et rincés plusieurs fois avec l'eau du milieu de prélèvement.

Pour prévenir l'adsorption des radionucléides sur les parois du conteneur, nous avons immédiatement procédé à l'acidification du prélèvement. Environ 10ml d'acide chlorhydrique de grade analytique dont la concentration est de 11Moles a été ajouté à 1 litre de liquide prélevé [35].

## II. Préparation de l'échantillon d'analyse

Le récipient Marinelli comme conteneur pour l'échantillon

Les mesures faisant intervenir des faibles activités radioactives comparables au bruit de fond comme c'est le cas de notre étude exigent des rendements de détection élevés. Pour l'augmenter, il faut soit disposer d'un détecteur germanium de gros volume qui coute énormément cher, soit augmenter l'angle solide entre l'échantillon et le détecteur. C'est ce

dernier choix qui a été utilisé. Pour un angle solide maximum d'environ  $4\pi$ , il suffit que l'échantillon puisse englober quasi complètement le détecteur. Le récipient Marinelli en polyéthylène (figure ci-dessous) permet d'assurer ce type de géométrie  $4\pi$ . Avant qu'ils soient remplis, les récipients Marinelli sont nettoyés avec de l'acide chlorhydrique et rincés plusieurs fois à l'eau bidistillée.



**Figure 25: Préparation de l'échantillon pour l'équilibre séculaire**

Le liquide prélevé est conditionné dans le récipient Marinelli et fermé de façon étanche au gaz avec du para-film pour éviter toute fuite du Gaz Radon  $^{222}\text{Rn}$ . Après 30 jours d'entreposage au bout duquel l'équilibre séculaire du  $^{226}\text{Ra}$  avec ses descendants est atteinte cette durée représente environ 7 fois la période radioactive du  $^{222}\text{Rn}$ , on procède à l'acquisition des spectres gamma.

### III. Mesure par spectrométrie

L'installation de mesure (château de plomb, détecteur, chaîne électronique, logiciel)

L'installation de mesure spectrométrique est composée des éléments suivants (voir fig 19):

- ✓ Un blindage en plomb (figure 26): ce dispositif est essentiel dans les mesures environnementales faisant intervenir de très faibles activités comme c'est le cas de notre étude. Il est composé de plomb pour diminuer le rayonnement cosmique et celui de l'environnement du détecteur, et de cuivre dont le rôle est de réduire le rayonnement des photons X issus du plomb de blindage.
- ✓ Un détecteur de germanium hyper pur (GeHp) de marque Canberra Modèle GR3019 avec fenêtre en béryllium permettant l'accroissement du rendement de détection pour les faibles énergies des photons gamma ou X. Son efficacité relative est de

30% et sa résolution égale à 1,9 keV pour le pic 1332 keV du Cobalt 60. Pour atteindre ses performances optimales, le détecteur est polarisé à une tension de 3500 volts. Cette tension est délivrée par un module Haute tension modèle 659 du fabricant ORTEC. Pour réduire le bruit de fond dû à l'agitation thermique des électrons, le cristal de germanium qui est le milieu détecteur nécessite un refroidissement à la température de l'azote liquide (77°K)

- ✓ Un préamplificateur intégré au dispositif de détection afin d'éviter les parasites électroniques apportés par le câble.
- ✓ L'amplificateur modulaire du fabricant ORTEC modèle 672 présente une non-linéarité inférieure à 0,025 % dans la gamme de mesure énergétique choisie.
- ✓ Le module MCB ORTEC 926 réalise deux fonctions. La première est la conversion du signal analogique délivré par l'amplificateur en un signal numérique pour permettre le stockage de l'information représentée par l'amplitude de l'impulsion dans le canal approprié. Les impulsions d'amplitude proche seront stockées dans le même canal. On aura ainsi une représentation en histogramme du spectre collecté. Le gain de conversion du convertisseur atteint 8192 canaux. Ce module assure aussi la fonction d'interfaçage de la chaîne de mesure avec le micro-ordinateur.
- ✓ Un rack d'alimentation qui fournit en tension continue les modules électroniques de la chaîne qui sont : la haute tension, l'amplificateur et le module MCB (MultiChannel Buffer) .
- ✓ Le logiciel d'affichage et de traitement de spectre utilisé est Gammavision du fabricant ORTEC. Ce logiciel regroupe un ensemble de programmes qui permettent non seulement d'identifier les pics gamma et par conséquent le radionucléide responsable, mais aussi arrivent à quantifier l'aire des pics enchevêtrés situés dans une zone de spectre complexe.
- ✓ Un oscilloscope est nécessaire pour afficher la forme du signal. La forme gaussienne du signal révèle le bon fonctionnement de l'amplificateur.



Figure 26 : Détecteur dans son blindage



Figure 27 : Chaîne de spectrométrie gamma

## IV. Etalonnage de l'installation de mesure

### IV.1. Etalonnage électronique

Lorsque le photon dépose son énergie dans le milieu de détection, un signal de tension est généré. Ce signal est mise en forme, amplifier et convertie en un signal numérique pour permettre un affichage sous forme d'histogramme. Il existe une relation de proportionnalité entre l'énergie déposé par le photon et le canal qui lui correspond. Cette relation dépend principalement de deux ajustements. Le premier est réalisé sur l'amplificateur afin de régler le gain d'amplification. Il a été fixé à 65. Le second réglage est effectué sur le module MCB en choisissant un gain de conversion de 8192 canaux. Cette opération d'étalonnage électronique de la chaîne permet de s'assurer du bon fonctionnement électronique de la chaîne de mesure et d'afficher grossièrement la position des pics photoélectrique d'intérêt. Cette opération doit être suivie par un étalonnage précis en énergie et efficacité.

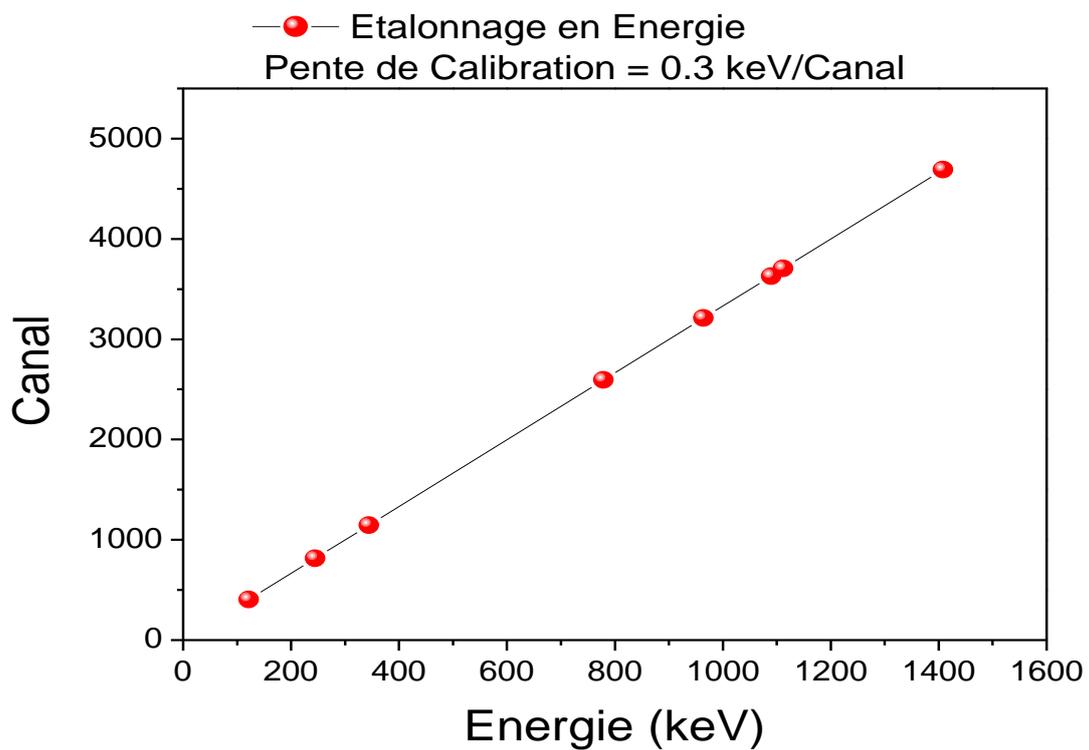
### IV.2. Etalonnage en énergie

Comme expliqué dans le chapitre précédent, l'étalonnage en énergie permettra de convertir les canaux en énergie. Pour cela il faudra correspondre les énergies des photons gamma émis par une source étalon connue avec les canaux appropriés. Il est préférable d'utiliser un ou des étalons dont le spectre énergétique des photons couvre l'étendu 0 à 2000 keV. L'étalonnage en énergie a été réalisé avec une source d'Europium 252 ( $^{252}\text{Eu}$ ). Le tableau ci-dessous renferme les raies utilisées pour l'étalonnage ainsi que les canaux qui leur

correspondent. La courbe de la figure 4 illustre l'évolution de l'énergie des photons gamma en fonction de la position du canal.

**Tableau 5: Raies gamma de  $^{152}\text{Eu}$  utilisées pour l'étalonnage**

Canal	Energie (keV)
405.80	121.78
815.20	244.70
1146.82	344.28
2594.67	778.91
3211.53	964.13
3630.09	1089.70
3704.92	1112.12
4690.64	1408.01



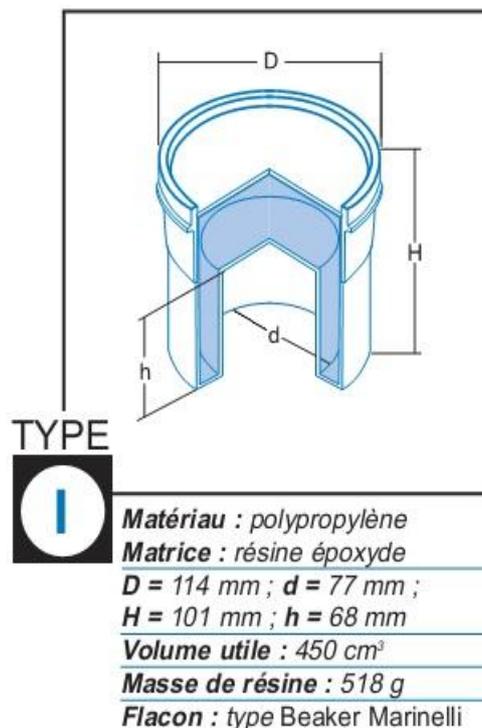
**Figure 28: Courbe d'étalonnage en énergie**

L'expression liant l'énergie au canal obtenu est la suivante :  $E = -0.0619 + 0.300272X$

Une commande du logiciel GAMMAVISION permet de générer automatiquement la courbe d'étalonnage. E représente dans l'équation l'énergie des photons gamma et X la position du canal dans le spectre.

### IV.3. Etalonnage en efficacité

Le rendement de l'installation de mesure n'est pas un paramètre proportionnel à l'énergie des photons détectés. Il dépend aussi de la géométrie source-détecteur appliquée. Pour déterminer son évolution il suffit d'étalonner la chaîne de mesure avec une source multi-gamma présentant la même forme que l'échantillon. L'étalonnage en efficacité (ou rendement) a été réalisé avec une source d'euporium dont la forme et les dimensions sont identiques à celles de l'échantillon. La source (fig29) est conditionnée dans un conteneur Marinelli de type I de volume égal à  $450 \text{ cm}^3$  similaire à celui utilisé pour l'échantillon. L'activité de la source est de  $4,17 \text{ kBq}$  dont la date de référence est le 29 novembre 2000 à 12 h.



**Figure 29:conteneur marinelli type I**

En utilisant l'expression de l'efficacité (équation.16) du chapitre précédent, nous pouvons déterminer la valeur de l'efficacité pour chaque photon d'énergie E émis par la source étalon. Le logiciel GAMMAVISION comporte un algorithme permettant de tracer et de déterminer

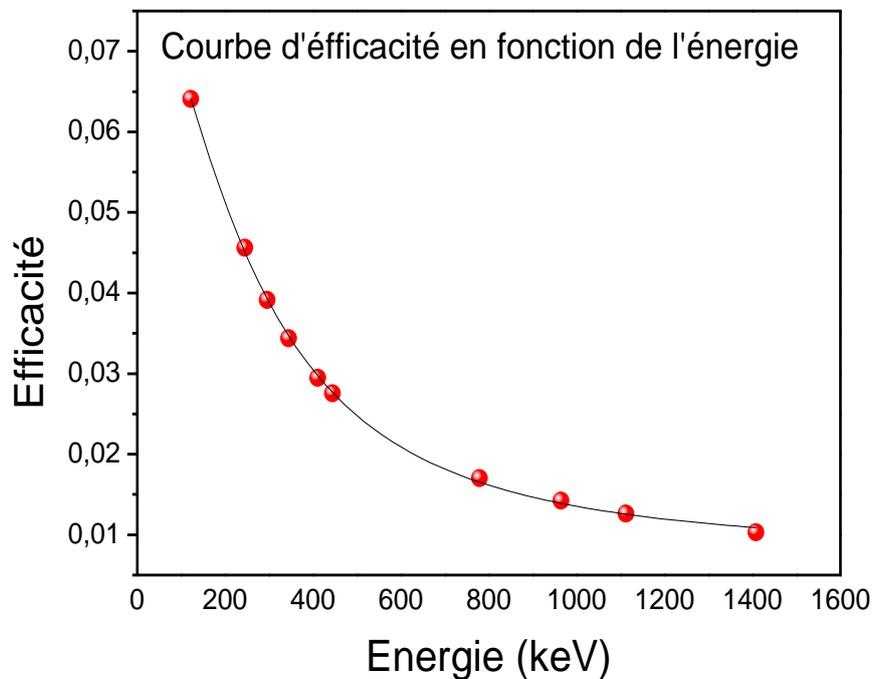
l'expression de la courbe qui lie les points de mesure expérimentaux. L'expression de l'efficacité générée par logiciel est la suivante :

$$\text{Ln}(\text{Eff}) = -2.7134 + 0.441720 * \text{Ln}(\text{En}) - 0.099425 * (\text{Ln}(\text{En}))^2$$

**Tableau 6: Raies gamma de  $^{152}\text{Eu}$  utilisées pour l'efficacité**

Energie	Efficacité
121.78	5.6616E-002
244.70	3.5452E-002
295.94	3.0114E-002
344.28	3.2001E-002
411.11	2.4191E-002
443.98	2.1645E-002
778.91	1.5034E-002
964.13	1.1948E-002
1112.12	1.1082E-002
1112.12	1.1475E-002
1408.01	9.1281E-003

Dans cette expression, Eff est l'efficacité et En l'énergie des photons gamma. La courbe de l'efficacité présente l'allure de la figure 30.



**Figure 30: Evolution de l'efficacité en fonction de l'Energie (Kev)**

#### IV.4. Mesure du bruit de fond

La mesure du bruit de fond est essentielle pour notre étude car les activités mesurées issues des échantillons sont relativement très faibles. Afin de garder les mêmes conditions de mesure, le spectre de bruit de fond émanant de l'installation de mesure et de son environnement a été déterminé en présence d'un échantillon d'eau bidistillée ou désionisée (ne contient pratiquement pas d'ions) conditionné dans un récipient Marinelli type I et entreposé sur le détecteur de la même manière que les échantillons. La durée de l'acquisition de spectre est de 24 heures. Le spectre de bruit de fond de la figure ci-dessous révèle la présence des radionucléides de la série de l'uranium et du Thorium.

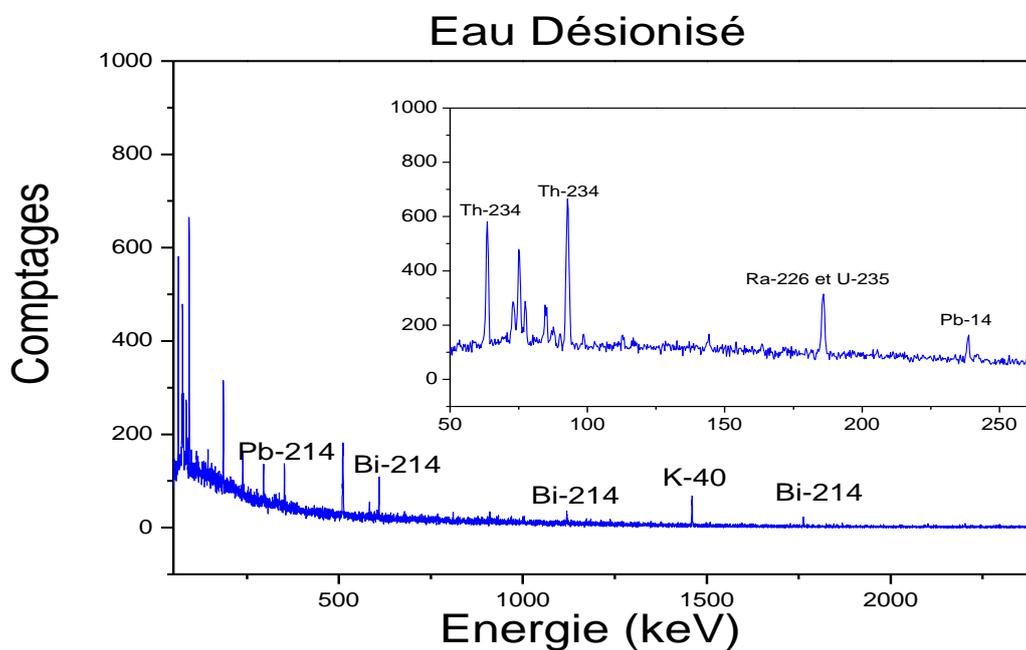


Figure 31: le spectre de bruit de fond (Eau désionisé)

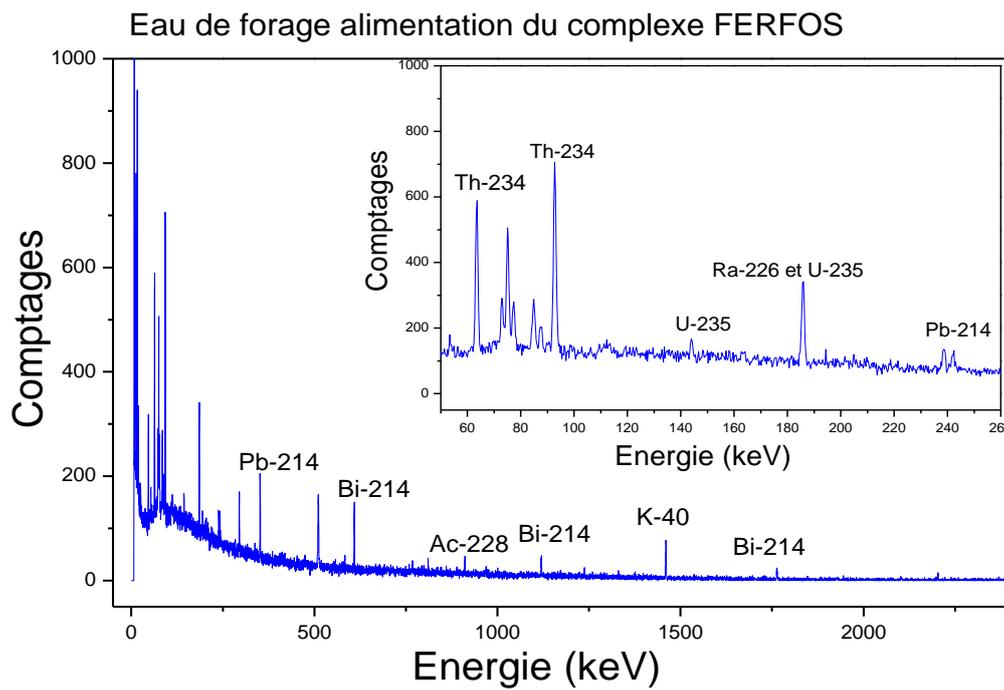


Figure 32: Spectre des rayonnements  $\gamma$  émis par l'échantillon d'eau de forage issue de la zone phosphaté

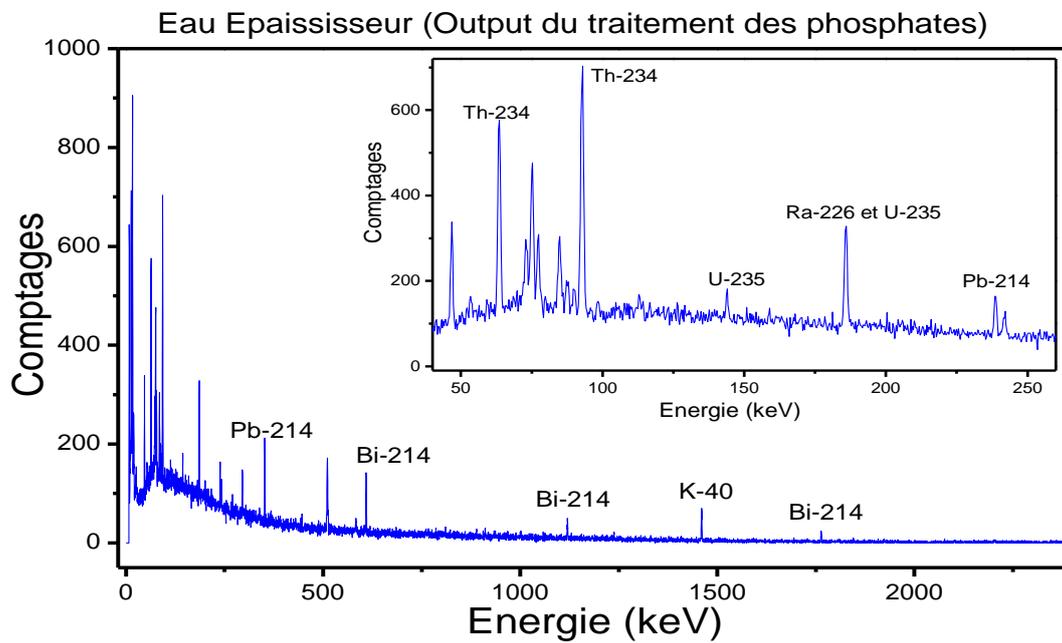


Figure 33: Spectre des rayonnements  $\gamma$  émis par l'échantillon d'eau issue de l'épaississeur (procédé de traitement des phosphates par la voie humide)

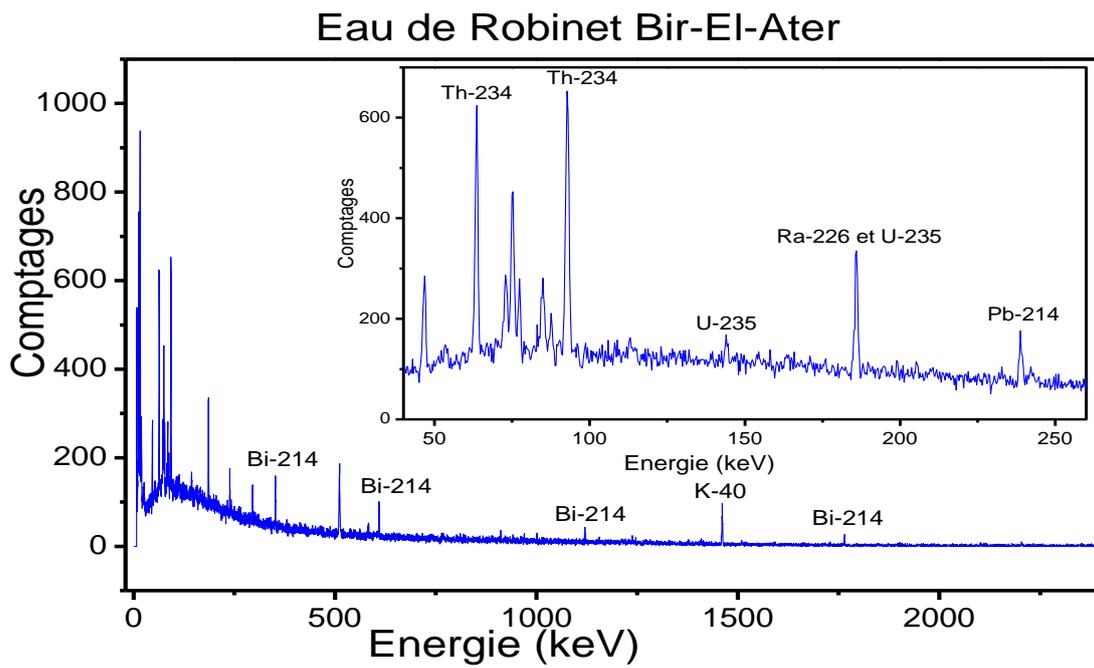


Figure 34: Spectre des rayonnements  $\gamma$  émis par l'échantillon d'eau de robinet à Bir-El- Ater à proximité du complexe de traitements des phosphates FERFOS

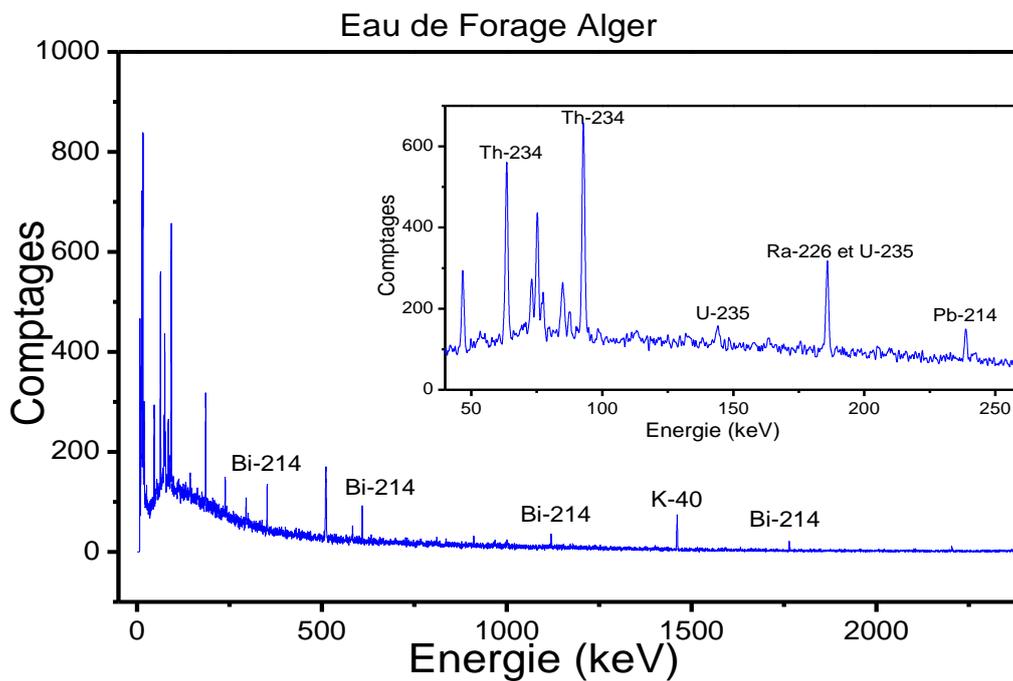


Figure 35: Spectre des rayonnements  $\gamma$  émis par l'échantillon d'eau de forage à Alger

**Tableau 7: comptages des différents radioéléments identifiés dans les différents échantillons d'eau**

Radionucléide	Raie spécifique (keV)	Bruit de fond	Eau Epaisseur	Eaux de robinet de Bir-El-Ater	Eau de forage (zone phosphate)	Eau de forage Alger
$^{234}\text{Th}$	<b>63,3</b>	1705	1752	1814	1739	1880
$^{214}\text{Pb}$	<b>241,98</b>	108	195	98	200	76
	<b>351,9</b>	427	777	538	748	437
$^{214}\text{Bi}$	<b>609,3</b>	421	699	452	681	435
	<b>1120,28</b>	181	238	198	244	213
	<b>1238,11</b>	93	109	111	112	49
$^{228}\text{Ac}$	<b>338,3</b>	74	60	58	21	92
	<b>911,6</b>	106	150	137	226	145
	<b>964,64</b>	15	40	46	37	54
	<b>968,97</b>	74	76	86	87	73
$^{208}\text{Tl}$	<b>583,2</b>	149	134	161	125	163
	<b>860,5</b>			61	55	42
$^{235}\text{U}$	<b>143,7</b>	150	247	167	186	140
$^{40}\text{K}$	<b>1460,8</b>	454	486	630	564	574
$^{134\text{m}}\text{Pa}$	<b>1001,03</b>	77	125	109	108	128

Les échantillons ont été analysés dans les mêmes conditions que la mesure du bruit de fond. La durée de l'acquisition des spectres est de 24 heures. Les spectres (figures 32, 33,34 et 35) illustrent la présence et les niveaux d'activité des radioéléments des trois séries naturelles. Le tableau 6 renferme les niveaux de comptage des principaux radioéléments présents dans les spectres.

## V. Résultats et discussion

L'activité des radionucléides présents dans les spectres est calculée à l'aide de l'expression de l'activité (équation 22) du chapitre précédent. Le tableau 7 présente les valeurs de la probabilité d'émission et l'efficacité pour chaque raie gamma utilisées pour le calcul de l'activité des radionucléides.

Tableau 8: probabilité d'émission et efficacité des raies gamma des radio-isotopes identifiés

Radionucléides	Raie spécifique (keV)	Probabilité d'émission (%)	Efficacité
<sup>234</sup> Th	63,3	3,8	5,84E-02
<sup>214</sup> Pb	241,98	7,12	4,79E-02
	351,9	37,2	3,51E-02
<sup>214</sup> Bi	609,3	46,3	2,18E-02
	1120,28	15,1	1,30E-02
	1238,11	5,9	1,20E-02
<sup>228</sup> Ac	338,3	11,4	3,63E-02
	911,6	27,7	1,55E-02
	964,64	5,05	1,48E-02
	968,97	16,6	1,47E-02
<sup>208</sup> Tl	583,2	84,2	2,26E-02
	860,5	12,5	1,63E-02
<sup>235</sup> U	143,7	10,5	6,43E-02
<sup>40</sup> K	1460,8	10,67	1,04E-02
<sup>134m</sup> Pa	1001,03	3,28	5,73E-02

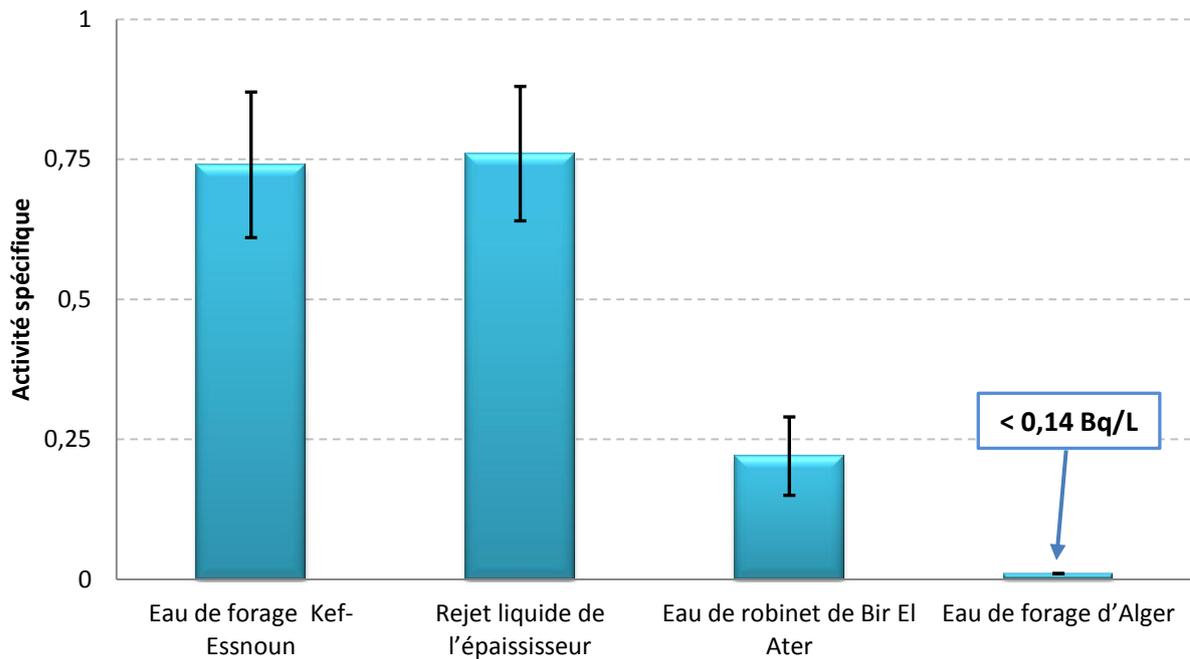
Il est nécessaire de déduire du comptage de chaque pic photoélectrique, la contribution du bruit de fond. Les incertitudes élevées associées aux activités s'expliquent par la faiblesse des activités issues des échantillons dont l'intensité est légèrement supérieure à celle du bruit de fond. Le tableau 8 renferme la valeur des activités spécifiques des radionucléides qui ont été identifiées et quantifiées. L'incertitude associée à la valeur de l'activité représente un écart type de 1 sigma (68% d'intervalle de confiance).

Tableau 9: Activité spécifique des radionucléides analysés

Radioélément	Eau de forage Kef- Essnoun [Bq/l]	Rejet liquide de l'épaisseur [Bq/l]	Eau de robinet de Bir El Ater [Bq/l]	Eau de forage d'Alger [Bq/l]
<sup>40</sup> K	2,67 ± 0,82	1,26 ± 0,79	4,61 ± 0,87	3,32 ± 0,72
<sup>214</sup> Pb	0,69 ± 0,12	0,74 ± 0,11	0,22 ± 0,10	< 0,11*
<sup>214</sup> Bi	0,80 ± 0,14	0,77 ± 0,14	0,22 ± 0,04	< 0,18*
<sup>228</sup> Th	6,4 ± 2,5	9,2 ± 2,7	5,8 ± 3,3	5,7 ± 2,9
<sup>234m</sup> Pa	9,8 ± 6,8	15,2 ± 8,1	10,2 ± 3,8	16,1 ± 7,2
<sup>226</sup> Ra	0,74 ± 0,13	0,76 ± 0,12	0,22 ± 0,07	< 0,14*

\*Minimum détectable activité

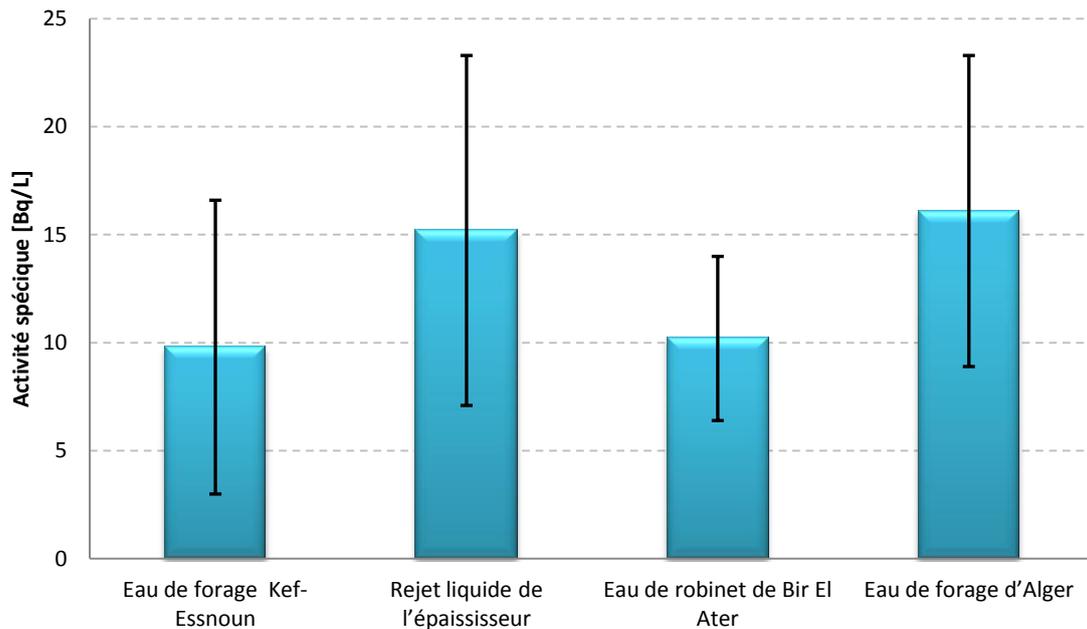
Le processus d'analyse mené a permis d'analyser six radio-isotopes qui sont :  $^{228}\text{Th}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  et le  $^{40}\text{K}$ . Le premier appartient à la série du  $^{232}\text{Th}$  ; les suivants exceptés le  $^{40}\text{K}$  sont les descendants de l' $^{238}\text{U}$ .



**Figure 36: Activité spécifique du  $^{226}\text{Ra}$  dans les échantillons**

Sur la base des résultats obtenus, on constate que le radium  $^{226}\text{Ra}$ , élément très soluble dans l'eau, est présent dans les trois échantillons liquides prélevés dans la région de Djebel Onk à savoir l'eau de forage de Kef-Essnoun, rejet liquide de l'épaisseur et eau de robinet de Bir el ater. En revanche le radium n'a pas été détecté dans l'échantillon issu de la région d'Alger. Sa concentration est inférieure à la limite de détection évaluée à 0.14 Bq/l.

Aussi, l'eau d'alimentation de l'usine et le rejet liquide présentent une activité spécifique en  $^{226}\text{Ra}$  quasi-égale. Ceci montre que le processus d'enrichissement n'apporte pas un supplément d'activité au liquide rejeté.



**Figure 37: Activité spécifique du  $^{234m}\text{Pa}$  dans les échantillons**

Le radionucléide  $^{234m}\text{Pa}$ , émetteur gamma utilisé pour la quantification indirecte de l' $^{238}\text{U}$ , indique une activité spécifique à Alger supérieure aux régions de Bir-El-Ater et Kef-Essnoun. En réalité, ceci ne peut être affirmé en raison des incertitudes élevées associées aux valeurs de concentration. La similitude des activités spécifiques du  $^{214}\text{Pb}$  et  $^{214}\text{Bi}$  montre que l'équilibre séculaire entre le  $^{226}\text{Ra}$  et ses descendants a été bien établi.

L'eau de Bir El Ater se révèle aussi plus chargée en  $^{40}\text{K}$  que les autres lieux de prélèvement.

Ainsi, les conclusions qui peuvent être tirées de ses résultats sont les suivantes :

1. Une présence du  $^{226}\text{Ra}$  dans l'eau de forage alimentant l'usine et le rejet liquide issu de l'épauiseur supérieure à la limite maximale admissible (LMA) égale à 185 mBq/L établie pour l'eau de consommation par l'agence Américaine de protection de l'environnement [36].
2. Le procédé d'enrichissement n'introduit pas un supplément de radioactivité en  $^{226}\text{Ra}$  à l'eau rejetée.
3. Une activité spécifique en  $^{226}\text{Ra}$  supérieure au LMA a été mesurée dans l'eau de robinet de Bir El Ater, région riche en phosphate. La présence du radium émetteur alpha par excellence peut affecter la santé de la population de la région.
4. Le stockage des liquides riches en radium rejetés par l'usine dans des bassins non isolés du sol peut conduire à l'accumulation du radium dans la zone et ainsi affecter par infiltration les nappes aquifères.

## *Conclusion générale*

---

## Conclusion générale

L'étude a porté sur l'évaluation de la radioactivité des rejets liquides issus de l'usine d'enrichissement du minerai de phosphate implantée dans la région de Djebel Onk. Pour cela, quatre sites ont fait l'objet de prélèvement liquide ; il s'agit du puits de forage alimentant l'usine, de l'épaisseur de l'usine, de l'eau de robinet de la ville de Bir El Ater et d'un forage d'eau de boisson de la région d'Alger. La méthode nucléaire d'analyse utilisée est basée sur la technique de spectrométrie gamma fine. Elle a permis l'identification et la quantification des radioéléments suivants de la série naturelle de l'Uranium et du Thorium:  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{40}\text{K}$ ,  $^{234\text{m}}\text{Pa}$ . L'activité des deux premiers radioéléments ont été exploités pour déterminer l'activité spécifique du  $^{226}\text{Ra}$ . Les résultats d'analyse ont révélé une teneur élevée en  $^{226}\text{Ra}$  égale à 750 mBq/L aussi bien dans l'eau de forage alimentant l'usine que dans les rejets liquides. Au vue de l'égalité du niveau de  $^{226}\text{Ra}$  dans les deux échantillons, il est possible d'affirmer que le processus d'enrichissement n'apporte pas un supplément d'activité au liquide rejeté.

Toutefois, les bassins recevant ces liquides verront par effet d'accumulation leur activité augmentée en  $^{226}\text{Ra}$ . En l'absence de couche isolante entre les eaux évacuées et le sol, le  $^{226}\text{Ra}$  étant très soluble dans l'eau s'infiltrera dans les profondeurs du sol et contaminera les nappes qui s'y trouvent. Ainsi, l'extraction, l'exploitation et le transport des eaux de forage vers un autre lieu faiblement radioactif peut causer un accroissement de l'activité radiologique de la région et affecter ainsi l'environnement.

Les mesures réalisées ont aussi dévoilées dans l'eau de boisson de Bir El Ater une activité en  $^{226}\text{Ra}$  supérieure à la concentration maximale admissible établie par l'agence américaine de protection radiologique de l'environnement. Cette valeur est fixée pour le radium à 185 mBq/L. A Bir El Ater, l'activité du  $^{226}\text{Ra}$  a été trouvé égale à 220 mBq/L. Aux Etat Unis, une telle valeur est exigible d'une autorisation d'exploitation par les autorités compétentes. Les recherches menées dans le monde montrent que l'exposition à un niveau élevé de radium peut causer la fragilisation de la dentition et l'apparition des tumeurs osseuses. L'observation d'une perte précoce des dents et des maladies de la gencive au sein de la population ovine et des habitants de la région étudiée ne sont-elles pas causé par la présence excessive du radium dans l'eau de boisson ainsi que dans les nappes ? Ces résultats doivent être confirmés par d'autres expériences faisant intervenir plusieurs dizaines de prélèvements dans la région ainsi que d'autres techniques d'analyse nucléaire telle que la spectrométrie alpha.

Pour éviter le renforcement de la radioactivité naturelle de la région du à l'activité humaine, on propose d'effectuer les mesures suivantes :

- Installer dans le bassin un film plastique permettant d'isoler le sol des eaux de rejets et éviter ainsi l'infiltration du radium
- Multiplier autant que possible le nombre de bassin afin de permettre l'évaporation totale du liquide. La poussière collectée sera entreposée dans des conteneurs.
- Optimiser l'utilisation de l'eau de forage.

Il importe aussi d'effectuer des mesures de la radioactivité des eaux de forage destinées à la boisson que se soit pour les hommes ou les animaux. S'il s'avère que le niveau radiologique dépasse les normes établies, la recherche de sources d'eaux conformes à la réglementation est recommandée.

Ce type d'investigation ne doit pas se limiter aux zones de gisement de phosphate mais doit aussi concerner les zones uranifères et granitiques.

## *Référence bibliographique*

---

Bibliographie

- [1] Ronov AB, Yaroshevsky AA, Chemical composition of the Earth's crust. In: Hart PJ (ed) The earth's crust and upper mantle, geophysical monograph., vol 13. American Geophysical Union, Washington., 1969.
- [2] P. Nicoloni, Géologie et exploration minière., Edition Tec&doc, Lavoisier, 1990.
- [3] V. Smirnov, Géologie des minéraux utiles., Traduit en français en 1988. Edition Mir Moscou., 1982.
- [4] R. KECHICHED, Typologie géochimique et géostatistique des minerais de phosphates du gisement de Bled El Hadba – Djebel Onk (Algérie Orientale), Mémoire de Magister Option: Les gisements des substances utiles: géologie et développement Université de BADJI MOKHTAR-ANNABA 163 P., 2011.
- [5] S. FERRAG DIT ALLEG, Recyclage des eaux et récupération des schlamms phosphates issus des procédés de classification gravimétrique, Mémoire de Magister, UNIVERSITE BADJI MOKHTAR-ANNABA Option : valorisation et gestion des ressources minérales 100P, 2010.
- [6] M. Slansky, Géologie des phosphates sédimentaires., Mém. Bur. .Mém. B.R.G.M. n°114, France, 1980.
- [7] R. Guibrandsen, Chemical composition of phosphorites of the Phosphoria formation., Geochim. Cosmo-chim. Acta, 1966.
- [8] Mezghache H. et Hani A., Typologie chimique des phosphates du gisement de Djemi-Djema, bassin de Djebel Onk (Algérie orientale), Géologie Méditerranéenne. Tome XXVII n° 1/2, 2000, 2002.
- [9] Prevôt, L., Lucas, J. , Comportement de quelques éléments traces dans les phosphorites., Scl. Géol., Bul, 1979.
- [10] J. N. Gony, Etude cristallographique du phosphate uranifère de Bakouma (République centre africaine), Commissariat à l'énergie atomique, C.E.N. Saclay, rapport CEA-R-400E., 1971.
- [11] Gabshin, V.M., Bobrov, V.A., Zorkina, L.S., Quantitative relations between uranium and phosphore in phosphorites and phosphatic sedimentary., Rocks.lithol.miner. Res.9 n°6., 1974.
- [12] Cielensky., Benchernine. , Travaux de prospection et d'évaluation des phosphates dans la région de Bir El Ater, Rapport interne, EREM., 1987.
- [13] A. BOUDRIES, Etude géologique et géostatistique de l'Uranium (U) dans le gisement de phosphate de Kef Es Sennoun, Mémoire de Magister Option: Sciences de la Terre Université Badji Mokhtar-Annaba, 2008.
- [14] Z. F. AKEL, Mesure Par Spectromètre Gamma A Bas Bruit De Fond De l'Activité Spécifique Des Eléments Radioactifs Présents Dans l'Environnement. Application Aux Matériaux De Construction., Mémoire de Magister en physique .Option : Application et rayonnement .Université Mentouri Constantine.123p, 2008.

## *Références bibliographiques*

---

- [15] A. BRAMKI, Mesure Par Spectrométrie Gamma De La Radioactivité Naturelle Présente Dans Des Echantillons De L'environnement, Memoire De Magister En Physique Option : Rayonnement Et Applications Université Mentouri Constantine. 121p, 2011.
- [16] A. MARNISSI, Etude de la radioactivité des matériaux de construction d'une chambre construite avec des briques contenant du phosphogyps, Etude de la radioactivité mémoire d'ingénieur en géosciences option: ingénierie de l'eau université de Tunis El Manar. 63p, 2007.
- [17] H. HRICHI, Détermination de la radioactivité dans les coupes pétrolières et les déchets, Mémoire d'Ingénieur en Sciences Appliquées et en Technologie Option:Chimie Industrielle, Université du 7 novembre, Carthage - 48p., 2009.
- [18] O. CAUDRELIER, Cours de la radioactivité, Centre de Préparation aux Concours Paramédicaux 31 P., 2013.
- [19] Y. ARNOUD, Cours de radioactivité, 2009.
- [20] Y. CHELET, La radioactivité: manuel d'initiation, Nucléon Paris 557 p., 2006.
- [21] C. Tremblay, Service de sécurité et de prévention Université LAVAL.67p, 2013.
- [22] Y. ARNOUD, «PHY113 : Cours de radioactivité», 6, 12, 13p, (2007).
- [23] Gordon R. Gilmore, John Wiley & Sons., Practical gamma-ray spectrometry 2nd edition, Nuclear training services Ltd–british library 381P., 2008.
- [24] B. Laurence, Etude de la radioactivité des eaux potables de Bretagne et perspective d'évaluation du risque sanitaire éventuel lié au radon, BOHM Laurence Etude de la radioactivité des eaux potables de Bretagne et perspective d'évaluation du Mémoire d'ingénieur. Option : génie sanitaire. Ecole Nationale de la santé publique DRASS de Bretagne.57p , 2007.
- [25] W. BOUKHENFOUF, Concentration de l'uranium -application aux fertilisants agricoles, thèse de doctorat en sciences physique, Option : Génie nucléaire, Université Ferhat Abbas-Setif - 68p., 2011.
- [26] Natural Decay Series, (Uranium, Radium, and Thorium) Argonne National Laboratory, EVS .Human Health Fact Sheet., 4p, 2005.
- [27] J. Bonnemains, La Radioactivité Naturelle Technologiquement Renforcée, Jacky Bonnemains La Radioactivité Naturelle Robin des Bois (association de protection de l'Homme et de l'environnement).164p , 2005.
- [28] A. SEMAKALU, Gammmaspectrometrical measurement of radium content in water – validation of analysis procedure, Institute of physics university of Tartu, 2012.
- [29] B. PRARD, Etude et utilisation d'un spectrométrie gamma pour mesure de la composition chimique des surfaces planétaires -applications à une mission vers mesure, Thèse de doctorat .Univercité de Toulouse III ;spécialité Instrumentation spacial., 2006.
- [30] N. REGUIGUI, Gamma Ray Spectrometry, 2006.

- [31] B. Pirarda, J. Cabrerab, C. d'Ustona, J.J. Thocavena, O. Gasnaulta, P. Leleuxb, J. Bru" ckner, Solar proton damage in high-purity germanium detectors, *Journal " Nuclear Instruments and Methods in Physics Research" section A* 572 pp 698–707, 2007.
- [32] S L R Ellison (LGC-UK), M Rosslein (EMRA-Suisse), A Williams (UK), *Guide EURACHEM/CITAC Quantifier l'incertitude dans les mesure analytique*, Deuxième Edition. 116p, 2000.
- [33] N. TSOULFANIDIS, *Measurement and Detection of Radiation*, Second Edition University of Missouri-Rolla Taylor & Francis U S A , 636p, 1995.
- [34] ORTEC, *Gamma-Ray Spectrum Analysis and MCA Emulator for Microsoft Windows 2000 Professional, XP Professional SP2, and Vista Ultimate*, Software User's Manual A pp 66-B32 , 2009.
- [35] E.O. Agbalagba a, R.A. Onoja , *Evaluation of natural radioactivity in soil, sediment and water samples of Niger Delta (Biseni) flood plain lakes, Nigeria*, *Journal of Environmental Radioactivity* 102 pp 667-671, 2011.
- [36] L. Roper, *Toxicological profile for radium*, Agency for Toxic Substances and Disease Registry U.S. Public Health Service In collaboration with: U.S. Environmental Protection Agency, 1990.
- [37] [En ligne]. Available: [www.radioactivite.com](http://www.radioactivite.com).