

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE FERHAT ABBAS-SETIF
UFAS

FACULTE DES SCIENCES
DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

Thèse

Présentée Par :

BOUKHENFOUF WASSILA épouse AYAD

Pour l'obtention du Diplôme de

Doctorat sciences en Physique

OPTION : GENIE NUCLEAIRE

THEME

**CONCENTRATION DE L'URANIUM
-APPLICATION AUX FERTILISANTS AGRICOLES-**

Soutenue le : 05/10/2011 Devant la commission d'examen

H. HACHEMI	Prof. Univ. Abbas Ferhat Sétif	Président
A. BOUCENNA	Prof. Univ. Abbas Ferhat Sétif	Rapporteur
F. BENRACHI	Prof. Univ. Mentouri Constantine	Examineur
M. ABBACI	Maitre de Recherche, COMENA Alger	Examineur
A. BELAFRITES	Prof. Univ. Jijel	Examineur

Année universitaire 2010-2011

REMERCIEMENTS

*Je tiens, en premier lieu, exprimer ma profonde gratitude à Monsieur **Ahmed Boucenna**, qui a dirigé ce travail avec rigueur et patience et m'a fait bénéficier de ses compétences..... Il a pu me guider et me conseiller tout en me laissant une grande autonomie dans le travail que j'avais à mener.*

*J'adresse mes plus vifs remerciements à Monsieur **Azzouz Abdelhakim** pour ses efforts innombrables pour me permettre des facilités d'expérimentation, aussi pour sa participation très active pendant le déroulement des expériences. Je le remercie pour sa compassion, sa disponibilité et sa largeur d'esprit.*

Je remercie la direction générale du centre de recherche nucléaire de Birine (CRNB) pour les facilités qu'ils m'ont accordé pour effectuer les expériences.

*Mes remerciements vont également à Monsieur **H. Hachemi**, professeur au département de physique pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant de présider le jury.*

*Je remercie madame **F. Benrrachi**, professeur à l'université de Constantine, monsieur **A. Belfrites**, professeur à l'université de Jijel et monsieur **M. Abbaci**, maitre de Recherche au COMENA, d'avoir accepté de juger ce travail.*

Des remerciements particuliers sont adressés à ma chère amie Amrani wassila qui m'a trop aidé et qui a su me pousser à aller toujours de l'avant.

Je voudrais exprimer ma gratitude à mes inoubliables amies Hemici Malia, Amrani Naima, Ghrib Souad, Guessoum Khadoudj et Zaabar Awatif qui m'ont été d'une grande et précieuse aide. Qu'elles trouvent dans cette thèse un témoignage à mes sentiments et à mon respect le plus profond.

Je dois d'énormes remerciements à tout le personnel du CRNB qui n'ont cessé de prodiguer d'énormes efforts pour rendre mon séjour aussi agréable que possible.

Je voudrais remercier tous ceux qui ont participé de loin ou de près à l'aboutissement de ce travail.

Je voudrais remercier vivement tous les membres de ma famille pour l'aide qui n'ont cessé de fournir dès le commencement de ma thèse.

Dédicace

A mon père, l'homme qui a fait beaucoup pour moi.

A ma mère, qui a toujours été une source de tendance et d'encouragement.

A mes frères : Rédha, Farouk, Adel et Billel ;

A mes sœurs : Mounira et Lilia ;

A mes belles sœurs : Samia et Sara ;

A mon mari Abderrahim ;

A mes neveux : Moncef, Faouzi, Akram, Issam et Rami ;

*A l'âme de ma très chère sœur **SIHEM** qui restera toujours dans mon cœur.*

Je dédie ce travail...

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION.....	1
-------------------	---

CHAPITRE I : RADIONUCLEIDES

I. Radioactivité	3
II. Sources de radioactivité dans l'environnement	
1. Les rayonnements d'origine cosmique.....	3
2. Les rayonnements d'origine terrestre.....	4
3. Séries radioactives	4
Principaux radionucléides	5
L'uranium et sa série de désintégration.....	5
Le Thorium et sa série de désintégration.....	7
Le potassium.....	8
III. L'équilibre radioactif.....	9
IV. Les unités de mesures de la radioactivité.....	11
V. La radioactivité artificielle.....	12
VI. Généralités sur l'uranium.....	13
1. Propriétés physico chimiques.....	13
a. L'uranium élémentaire.....	13
b. Propriétés physiques de l'uranium.....	13
c. Propriétés nucléaires.....	13
d. Chimie de l'uranium en solution.....	14
2. L'uranium dans l'environnement.....	15
a. Origine	15
b. Radiotoxicité	16
c. Les complexes de phosphates d'uranyle	17

CHAPITRE II : DETECTION

I. Introduction	18
II. Le rayonnement gamma.....	18
III. La spectroscopie gamma : principe et applications	19
IV. Interaction du rayonnement gamma avec la matière	20

1. L'effet photoélectrique	20
2. La diffusion Compton	21
3. La production de paire	22
4. Section efficace d'interaction et coefficient d'atténuation	23
V. Principe de fonctionnement du détecteur semi –conducteur	24
1. Les semi-conducteurs	24
2. Détecteurs germanium	26
VI. Chaîne de mesure : du photon détecté au signal numérique	26
1. Le convertisseur analogique-numérique et l'analyseur multi-canaux	28
2. Le logiciel de traitement et d'analyse du signal.....	28
3. Etalonnage.....	28
4. Caractérisation des performances d'un détecteur.....	29
a. Résolution en énergie	29
b. Efficacité de détection- Réponse en énergie.....	31
c. Le temps mort	32
d. Le bruit de fond	33

CHAPITRE III : FERTILISATION ET FERTILISANTS

1. Les composants du sol	34
2. Sol argileux	34
II. LES ENGRAIS	
1. Définition d'engrais.....	35
2. L'engrais phosphaté	35
3. Différents minerais contenant l'uranium	36
4. Les gisements de phosphates contenant l'uranium	36
a. Apatites	37
b. Structure des apatites	38
c. Brazilianite	38
d. Torbernite	39
e. Triplite	39
f. Turquoise	39
g. Xénotime	40
5. Métaux lourds dans le phosphate naturel	40
6. Procédés de fabrication des différents engrais phosphatés	41

7. Types d'engrais	42
8. L'uranium suit le processus de fabrication de l'engrais phosphaté.....	44
9. Impact de la pollution des sols sur la santé	45
10. Redistribution de l'uranium dans les écosystèmes en liaison avec l'action anthropique.....	45

CHAPITRE V : RESULTATS ET DISCUSSION

I. Échantillonnage et préparation des échantillons	46
II. Procédure expérimentale	47
III. Calibration de la chaîne de mesure	48
1. Calibration en énergie	48
2. Calibration en efficacité	49
3. L'activité minimale détectable	49
IV. Mesure des activités spécifiques des échantillons.....	50
1. Radionucléides identifiés dans les échantillons	50
2. Analyse du spectre de la terre non fertilisée	51
3. Analyse des spectres des fertilisants utilisés	52
4. Analyse du spectre de la terre fertilisée	53
5. Analyse de l'eau de puits utilisée pour irrigation	54
6. Calcul des activités moyennes des différents échantillons avec les erreurs	
Correspondantes	54
V. Les indices de risque des radiations	59
VI. Comparaison des concentrations de l'activité avec des études similaires	60
VI. Etude du déséquilibre radioactif entre l' ^{238}U et le ^{226}Ra	62
VII. Evaluation de la dose	65
Conclusion	68
Références bibliographiques	
Annexes	

LISTES DES FIGURES

- Figure 1. Séries radioactives naturelles de l'Uranium 238
- Figure 2. Séries radioactives naturelles de l'Uranium 235.
- Figure 3. Séries radioactives naturelles du thorium 232.
- Figure 4. Schéma de désintégration du ^{40}K .
- Figure 5. La possibilité pour que l'élément B atteigne l'élément A.
- Figure 6. Potentiels d'oxydoréduction de l'uranium en solvant HClO_4 1M à température ambiante.
- Figure 7. Représentation schématique d'un complexe de phosphate d'uranyle.
- Figure 8. Principales interactions des photons avec la matière.
- Figure 9 : Spectre en énergie d'électrons suite à des diffusions Compton.
- Figure 10. Principe du semi-conducteur : structure des bandes et fonctionnement.
- Figure 11. Détecteurs coaxiaux à base de germanium de type n et de type p.
- Figure 12. Schéma de la chaîne électronique et traitement du signal pour un spectromètre gamma de type HPGe.
- Figure 13. Définition de la résolution pour un pic parfaitement gaussien.
- Figure 14. Notion élémentaire d'angle solide.
- Figure 15. Etapes de fabrication d'engrais phosphatés à partir de phosphate naturel.
- Figure 16. Courbe d'étalonnage en efficacité.
- Figure 17. Les activités spécifiques du ^{226}Ra dans les échantillons de sol et de fertilisants.
- Figure 18. Les activités spécifiques de l' ^{238}U dans les échantillons de sol et de fertilisants.
- Figure 19. Comparaison de la radioactivité dans les sols vierge et fertilisé.
- Figure 20. Comparaison de la radioactivité dans les fertilisants NPK et NPKs.
- Figure 21. Les activités spécifiques du ^{137}Cs dans les échantillons de sol et de fertilisants.
- Figure 22. Les activités spécifiques du ^{232}Th dans les échantillons de sol et de fertilisants.
- Figure 23. Comparaison de la concentration du ^{40}K avec celle des autres radioéléments dans les échantillons de sol et de fertilisants.
- Figure 27. Comparaison des activités spécifiques du ^{226}Ra et de l' ^{238}U dans les échantillons de sol et de fertilisants.
- Figure 28. Comparaison des activités de l' ^{235}U , l' ^{238}U et le ^{226}Ra entre fertilisants algériens et marocains.
- Figure 29. Comparaison des valeurs de Ra_{eq} .

LISTE DES TABLEAUX

- Tableau 1. Périodes radioactives et abondance naturelle des principaux isotopes de l'uranium.
- Tableau 2. Propriétés du semi-conducteur Ge.
- Tableau 3. Récapitulatif des largeurs de gap et de l'énergie de création de paire pour différents matériaux semi-conducteurs.
- Tableau 4. Différents minerais comportant l'uranium.
- Tableau 5. Analyse chimique des éléments potentiellement dangereux dans des phosphates naturels sédimentaires.
- Tableau 6. Valeurs des activités minimales détectables.
- Tableau 7. Caractéristiques des radionuclides identifiés.
- Tableau 8. Activités des radioéléments identifiés dans l'échantillon de sol vierge.
- Tableau 9. Activités des radioéléments identifiés dans le fertilisant NPK.
- Tableau 10. Activités des radioéléments identifiés dans le fertilisant NPKs.
- Tableau 11. Activités des radioéléments identifiés dans l'échantillon de sol fertilisé.
- Tableau 12. Activités des radioéléments identifiés dans l'échantillon d'eau d'irrigation.
- Tableau 13. Valeurs d'activité du ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K et ^{137}Cs pour tous les échantillons (engrais, eau de puits et sols).
- Tableau 14. Concentration des activités de ^{238}U et de ^{235}U des échantillons étudiés.
- Tableau 15. L'activité du Radium équivalent et l'indice représentatif de niveau, $I_{\gamma r}$.
- Tableau 16. Comparaison des activités du Ra_{eq} et de $I_{\gamma r}$ dans les échantillons d'engrais phosphatés étudiés avec ceux d'autres pays.
- Tableau 17. Comparaison des activités du Ra_{eq} et de $I_{\gamma r}$ dans les échantillons de sols étudiés avec ceux d'autres pays.
- Tableau 18. Comparaison des activités de ^{235}U , ^{238}U et du ^{226}Ra entre fertilisants algériens et d'autres marocains.
- Tableau 19. Déséquilibre entre ^{238}U et le ^{226}Ra dans les échantillons de sol.
- Tableau 20. Comparaison des indices de radiation.

INTRODUCTION

INTRODUCTION

Alors que les terres arables ne cessent de diminuer, la population de notre planète augmente constamment. Par ailleurs, la demande des produits agricoles augmente également, exerçant une pression sur la production des différents types de produits agricoles pour la consommation humaine et animale. C'est dans cette perspective que les engrais constituent l'élément vital pour la fertilisation des sols. Les engrais sont des substances qui, à travers l'enrichissement des sols, apportent aux plantes des compléments d'éléments nutritifs qui permettent d'améliorer leur croissance et leur productivité.

La fertilisation phosphatée est très répandue dans les pratiques agricoles à travers le monde. Bien que généralement très efficace pour augmenter la production végétale, son utilisation peut engendrer certaines contaminations environnementales. La radioactivité liée aux phosphates a toujours constitué un souci des opérateurs dans le domaine des phosphates et de leurs dérivées.

Les sols sont naturellement radioactifs, à cause de leur contenu minéral. La radioactivité naturelle peut varier considérablement d'un type de sol à un autre. Une des sources de radioactivité dans les sols autre que ceux d'origine naturelle est principalement due à l'usage étendu d'engrais riche en phosphates (Abbady, 2008). Les minerais du Phosphate, minerais particulièrement sédimentaires, peuvent être riches en radionuclides naturels principalement l'uranium (^{238}U et ^{235}U) et leur chaîne radioactive (Hamdy et al., 2007).

Parmi plusieurs études celui de Bower, publié en 1978, a noté que la concentration d'uranium suit la concentration du pentoxyde de phosphore P_2O_5 dans les engrais phosphatés. Spalding et Sackett montrent, dans leur travail publié en 1972, que la série du ^{232}Th a seulement une contribution mineure à la radioactivité dans les engrais phosphatés comparé avec la série de l'uranium. En plus des deux séries radioactives citées ci dessus, les sols et les engrais phosphatés contiennent le radionuclide primordial ^{40}K (Ahmed et El - Arabi, 2005).

Pour arriver à la haute productivité, on a recourt à l'utilisation d'engrais chimiques, principalement composés qui peuvent remplacer les éléments nutritifs épuisés dans les sols. Leurs formules varient largement et leurs concentrations sont choisies d'après le besoin de chaque sol et culture (Becegato et al., 2008).

Une étude de la répartition de la radioactivité dans les différents fertilisants phosphatés en Algérie et, tout particulièrement celle de l'uranium, s'impose pour évaluer les concentrations

des radioéléments des chaînes radioactives naturelles dans les fertilisants à base de phosphates et l'impact radiologique sur leur utilisation dans les terres agricoles.

Les études de ce genre vont servir de données de base du niveau de radioactivité naturelle et seront utiles dans l'évaluation de doses à la population.

Prendre ceci en considération, le but principal de cette thèse est :

- D'estimer la concentration de l'uranium naturel dans les sols agricoles et dans les engrais phosphatés utilisés pour fertiliser ces derniers ;
- d'évaluer les flux des radionuclides naturels dans la production algérienne d'engrais phosphatés ;
- de déterminer le taux de radioactivité dans plusieurs engrais commerciaux qui sont produits dans les usines Algériennes ;
- d'estimer leur impact radiologique dans un sol cultivé et la longue exposition due à leur utilisation.

Pour ces buts, deux types d'échantillons de sol ont été rassemblés de la région de Guellal wilaya de Sétif. Le premier échantillonnage est fait sur une terre agricole non fertilisée. Le second échantillonnage est pris de la même terre mais après six ans de fertilisation pour pouvoir comparer la radioactivité qui s'est accumulée suite à la fertilisation par des fertilisants phosphatés bien sûr si elle existe. L'étude radioactive s'est étendue sur les fertilisants qui ont servi comme engrais. Ces derniers sont des fertilisants complexes de formule NPK et NPKs. L'eau d'irrigation a été aussi analysée pour estimer la contribution de son contenu de radioactivité.

Les travaux de cette thèse ont été menés suite au manque de documents publiés sur la radioactivité des fertilisants phosphatés et leur impact sur les terres agricoles en Algérie.

Dans notre présente étude, nous allons suivre une méthodologie qui développe ce contexte dans le but de déterminer le niveau de la radioactivité dans les fertilisants, les sols agricoles vierges et fertilisés afin de vérifier leur contamination ou non radiologique. Pour cela, notre travail vise à déterminer l'activité des radioéléments issus des familles naturelles de ^{238}U , de ^{235}U , de ^{232}Th et de ^{40}K dans les différents échantillons étudiés et estimer ensuite leur impact radiologique en utilisant la technique de spectrométrie gamma qui permet de calculer l'activité massique des radioéléments en question.

Chapitre I

RADIONUCLEIDES

Radioactivité

Dans la nature, la plupart des noyaux d'atomes sont stables. Cependant, certains atomes possèdent des noyaux instables, ceci est dû à un excès de protons, de neutrons, ou encore à un excès 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.

Le rayonnement alpha est constitué d'un noyau d'hélium comprenant 2 protons et 2 neutrons. Il porte 2 charges positives. Des atomes dont les noyaux radioactifs sont trop chargés en protons et en neutrons émettent souvent un rayonnement alpha. Ils se transforment en un autre élément chimique dont le noyau est plus léger.

Le rayonnement bêta est constitué d'un électron chargé négativement ou d'un positon chargé positivement. On parle alors de rayonnements β^- ou β^+ . La radioactivité bêta est rendue possible par la présence dans le noyau de forces capables de transformer un nucléon d'une espèce dans l'autre (un neutron en proton ou un proton en neutron). Cette transformation ne change pas le nombre de nucléons et est accompagnée de l'émission d'un électron (β^-) ou d'un positon (β^+) et d'un neutrino ou d'un antineutrino. Elle libère généralement de l'énergie.

Le rayonnement gamma suit souvent une désintégration alpha ou bêta. Après émission de la particule alpha ou bêta, le noyau est encore excité car ses protons et ses neutrons n'ont pas trouvé leur équilibre. Il se libère alors rapidement d'un trop-plein d'énergie par émission d'un rayonnement gamma. C'est la radioactivité gamma.

Sources de radioactivité dans l'environnement

Il existe deux sources naturelles de radionucléides : les rayons cosmiques et les rayonnements d'origine terrestre.

Les rayonnements d'origine cosmique

Les rayons cosmiques, constitués d'ions extrêmement énergétiques provenant du soleil et des galaxies, réagissent avec les atomes et molécules de l'atmosphère produisant ainsi les «cosmo-nucléides».

Les rayons cosmiques produisent également divers radionucléides suite à leurs interactions avec les molécules de l'atmosphère. Le plus abondant est le carbone-14 qui est également assimilé par l'organisme (tant qu'il est vivant) (Yannick 2007).

Principaux radionucléides cosmogéniques : ^3H , ^7Be , ^{10}Be , ^{14}C , ^{18}F , ^{22}Na , ^{26}Al , ^{31}Si , ^{32}Si , ^{32}P , ^{33}P , $^{34\text{m}}\text{Cl}$, ^{35}S , ^{35}S , ^{36}Cl , ^{37}Ar , ^{38}Mg , ^{38}S , ^{38}Cl , ^{39}Cl , ^{39}Ar , ^{80}Kr .

Les rayonnements d'origine terrestre

Les radionucléides d'origine tellurique appelés « nucléides primordiaux » sont naturellement présents, au moment de formation de la terre, dans la croûte terrestre et dans l'atmosphère produisant les rayonnements radioactifs telluriques.

Les radionucléides primordiaux naturels présents, soient ils se désintègrent en une seule fois en donnant des éléments stables (comme le potassium 40 et le rubidium 87); soient ils produisent une longue série de désintégrations (filiation radioactive) avant d'obtenir un élément stable : ce sont les familles radioactives de l' ^{238}U , ^{235}U et ^{232}Th ; dans lesquelles ces trois radionucléides produisent des séries de descendants eux même radioactifs (Meyerhof, 1985). La plupart des éléments radioactifs existant à l'état naturel appartiennent à ces trois séries de transformations.

Séries radioactives

Une chaîne de désintégration, dite encore filiation radioactive, désigne une série de désintégrations, apparaissant par transformation spontanée d'un radioisotope instable, permettant d'arriver à un élément chimique dont le noyau atomique est stable. Le plomb est généralement le point stable auquel les chaînes de désintégration s'arrêtent (Foulquier, 2002).

Dans une chaîne de désintégration, le noyau instable appelé « père » est stabilisé par une succession de désintégrations. Chaque étape est caractérisée par un état intermédiaire correspondant à un radionucléide appelé « fils » de l'élément père. Chacun des radio-isotopes fils de la chaîne est caractérisé par une constante de désintégration propre λ_i ($i = 1, 2, 3, \text{etc...}$). Dans la nature, il existe trois séries radioactives dont les nucléides parents respectifs ont des périodes comparables à l'âge de la terre (qui est de $4,5 \cdot 10^9$ ans) et qui sont : l'Uranium-238 ($^{238}_{92}\text{U}$, $T_{1/2} = 4,5 \cdot 10^9$ ans), l'Uranium-235 ($^{235}_{92}\text{U}$, $T_{1/2} = 7,13 \cdot 10^8$ ans) et le Thorium-232 ($^{232}_{90}\text{Th}$, $T_{1/2} = 1,4 \cdot 10^{10}$ ans). Ces trois radio-isotopes appartiennent au groupe des éléments actinides situés vers la fin du tableau périodique ; ils se transforment par émissions α et β^- successives en isotopes stables du plomb, qui sont, respectivement, $^{206}_{82}\text{Pb}$, $^{207}_{82}\text{Pb}$ et $^{208}_{82}\text{Pb}$.

Les nombres de masse des membres de chaque série s'expriment par la formule ((Foulquier, 2002):

$$A = 4n + C \quad (1)$$

Où n et la constante C sont des entiers.

Pour la série de l'uranium, n est compris entre 51 et 59 et $C = 2$; pour la série de l'actino-uranium, $51 \leq n \leq 58$ et $C = 3$ et pour la série du thorium, $51 \leq n \leq 58$ et $C = 0$.

Principaux radionucléides

L'Uranium et sa série de désintégration

L'uranium naturel est un élément radioactif très répandu dans la nature. On le retrouve notamment dans les granites ainsi que dans d'autres gisements minéraux (Bertel, 1992). Tel qu'il est extrait de son minerai contient 99.275% de l'isotope 238, 0.719% de l'isotope 235 et 0.005% de l'isotope 234. Les rayonnements émis par l'uranium sont principalement de type alpha. L'uranium a 17 isotopes, tous radioactifs, dont 3 seulement sont présents à l'état naturel : ^{238}U ; ^{235}U et ^{234}U . On trouve dans une tonne d'uranium naturel pur 7,1 kg d'uranium 235 et 54 g d'uranium 234, le reste étant de l'uranium 238. Quelles que soient les teneurs en uranium des milieux, les proportions entre les deux principaux isotopes formant l'uranium naturel sont pratiquement les mêmes. La proportion d' ^{235}U décroît à l'échelle des temps géologiques. Le troisième isotope ^{234}U appartient à la chaîne de désintégration de l' ^{238}U . L'isotope 234 est toujours présent sur Terre, à l'état de traces (0,0054 %), bien qu'il ait une demi-vie de seulement 245 500 ans ; car il est constamment généré par désintégration radioactive de l'isotope 238.

Ü L' ^{238}U : Il se désintègre très lentement, avec une période proche de 4.5 milliards d'années. Sa famille comporte 13 principaux descendants radioactifs émetteurs α , β - et γ et aboutit à un élément stable, le plomb 206 (Antony, 1992). Le radon ^{222}Rn est le sixième descendant de la filiation radioactive de l'uranium 238 (Figure 1). Il est issu de la désintégration du radium et se désintègre lui-même en quelques jours en ^{218}Po , en émettant une particule α . Sa période étant très courte (3,8 jours), on ne l'observerait pas dans notre environnement s'il n'était régénéré en permanence.

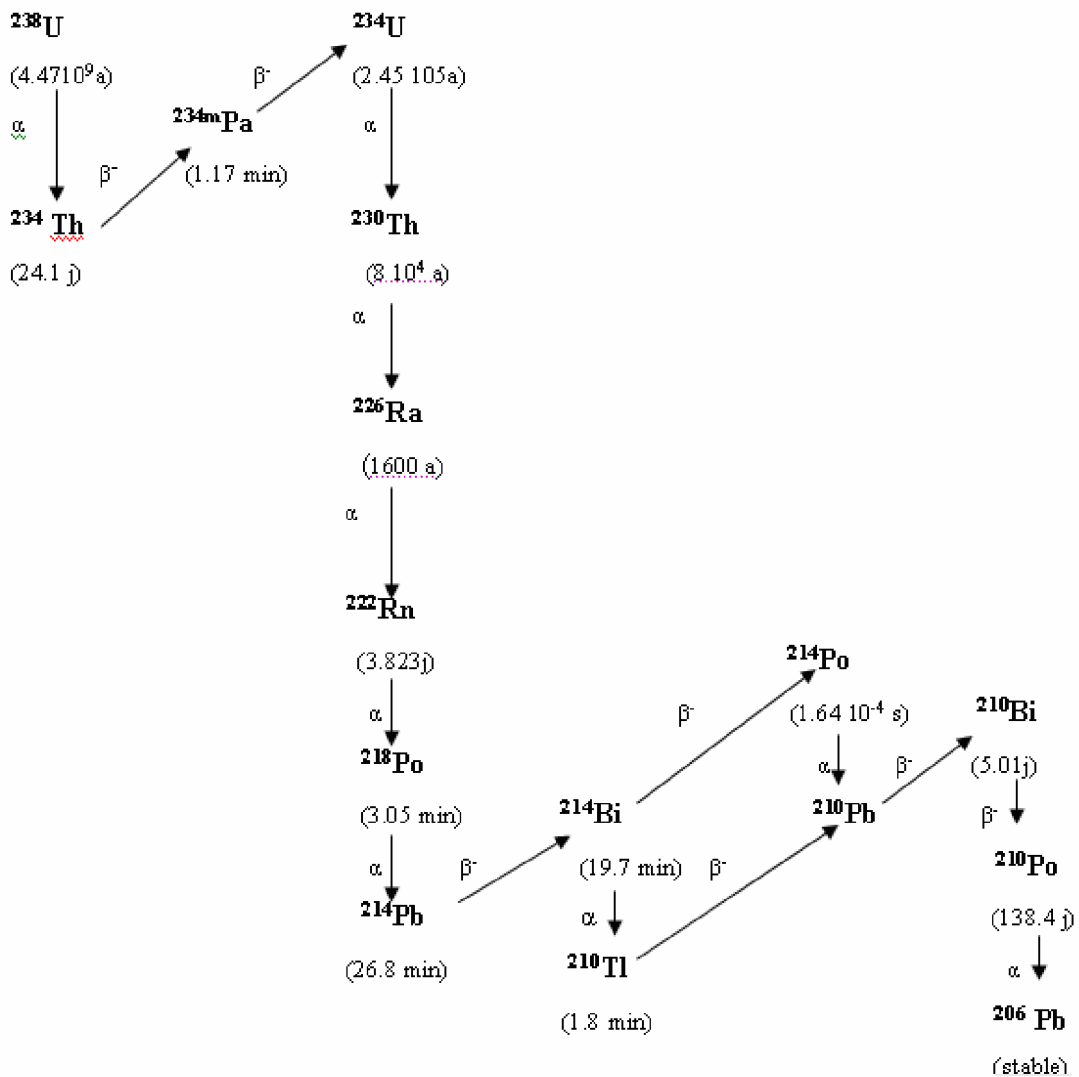


Figure 1. Séries radioactives naturelles de l'Uranium 238.

Ü L, ²³⁵U : Cette famille a pour chef de file l'²³⁵U, émetteur α de 7.04 10⁸ ans de période. Elle comprend 13 descendants principaux dont le dernier est le ²⁰⁷Pb qui est stable. La Figure 2 présente les différents descendants de l'²³⁵U, leurs modes de désintégration ainsi que leurs périodes respectives.

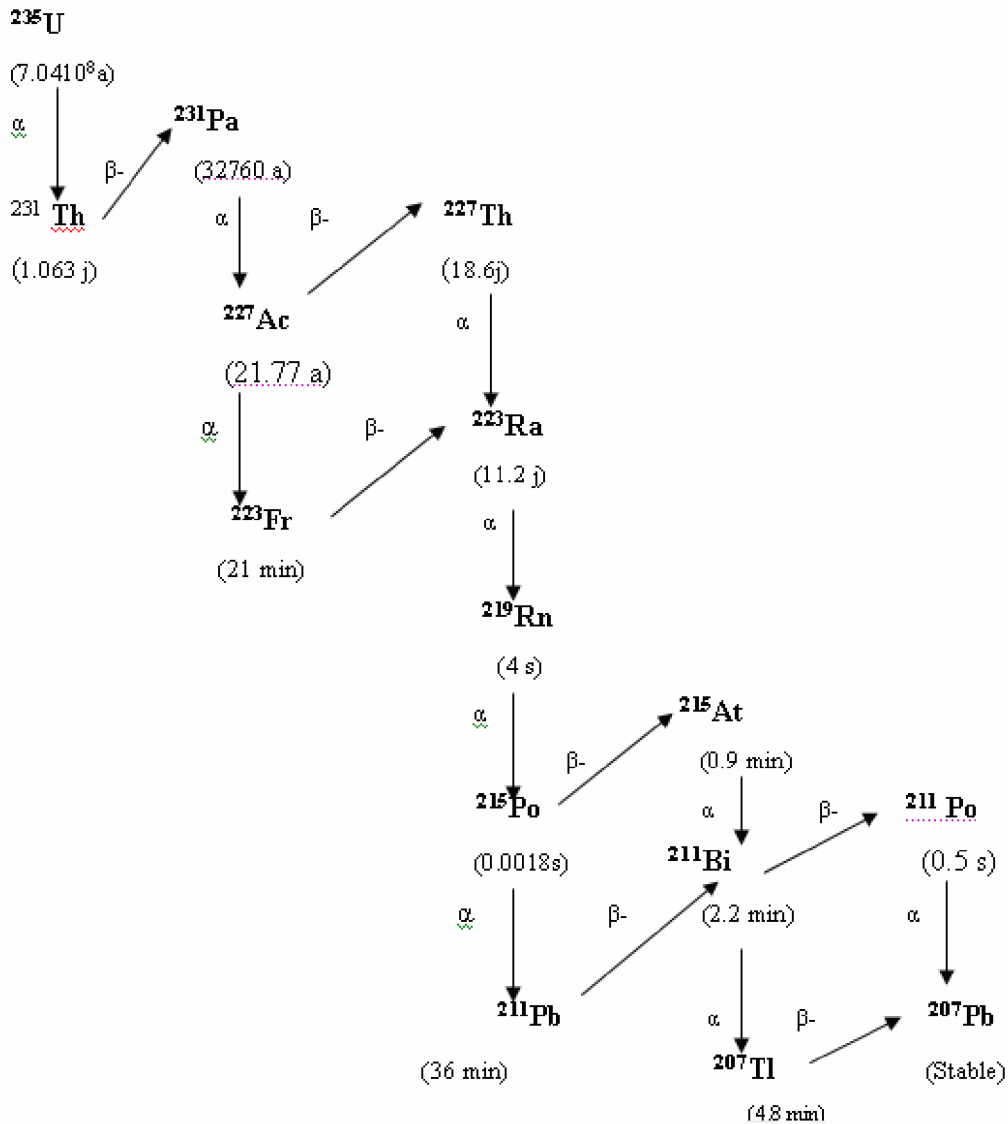


Figure 2. Séries radioactives naturelles de l'Uranium 235.

Le Thorium et sa série de désintégration

Le premier élément de cette famille est le ^{232}Th qui a une demi-vie égale à $1.405 \cdot 10^{10}$ ans. Cette chaîne radioactive se termine par le ^{208}Pb (Stable). Le thorium naturel est composé presque entièrement de ^{232}Th et de très petites quantités de ^{234}Th , ^{230}Th , ^{231}Th et ^{227}Th (Antony, 1992). Il appartient à la série des actinides ; il est présent, en particulier, dans les chaînes de décroissance radioactives de l'uranium naturel. Il présente 13 radio-isotopes (de masses atomiques allant de 212 à 236) dont le principal est ^{232}Th , radioélément primordial, émetteur de rayonnements alpha et de 14.1 milliards d'années de période. Il donne naissance à de nombreux produits de filiation dont l' ^{228}Ac , émetteur de rayonnements α et β^- . Ses dix principaux descendants sont des émetteurs α , β^- et γ , le dernier est le plomb 208 qui est stable.

La Figure 3 présente les différents descendants du ^{232}Th , leurs modes de désintégration ainsi que leurs périodes respectives.

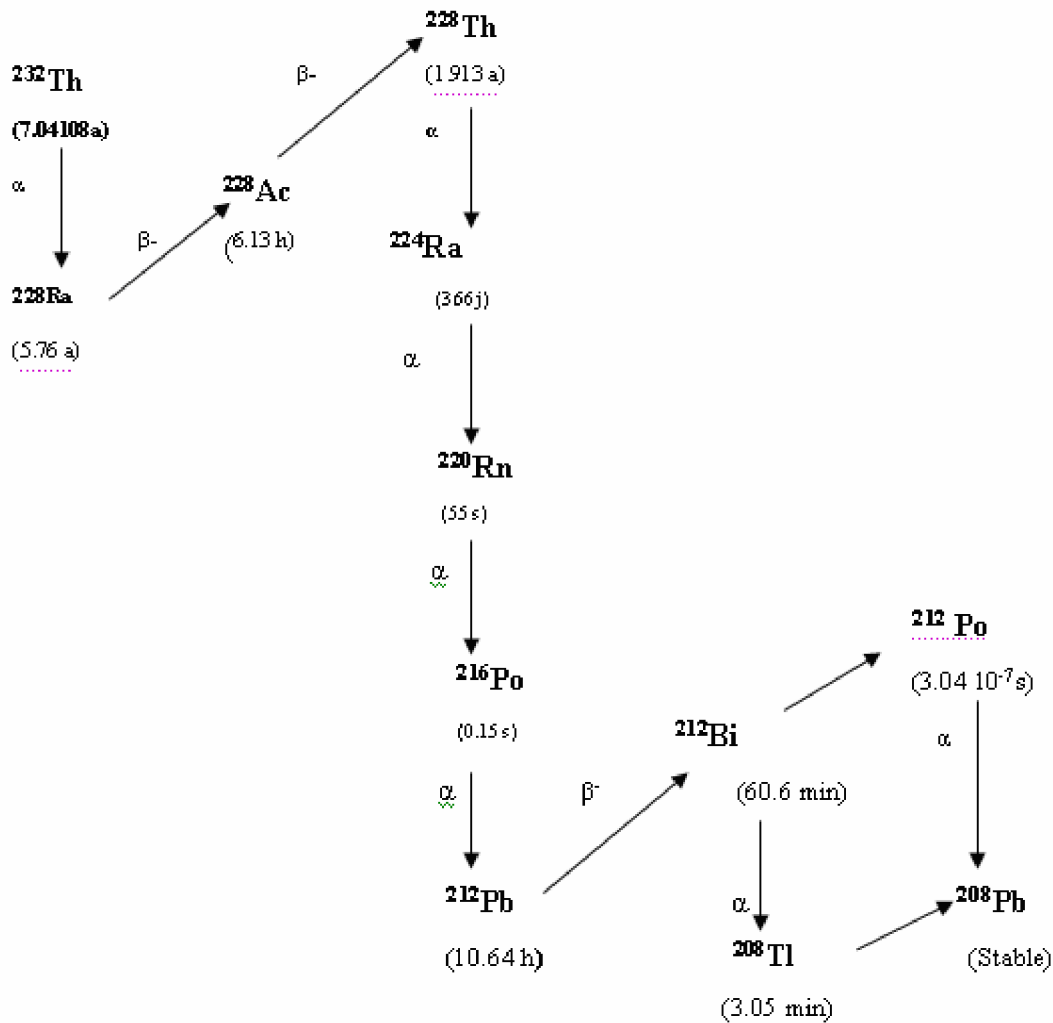


Figure 3. Séries radioactives naturelles du thorium 232.

Le Potassium

Le Potassium-40 (^{40}K) est un isotope radioactif naturel de l'élément potassium, qui représente environ 2,4% (par poids) de la croûte terrestre. Le ^{40}K est un élément primordial : sa demi-vie est de $1,2489 \times 10^9$ ans (Antony, 1992). L'abondance atomique relative du ^{40}K est de 0,0117%. Il se situe entre deux isotopes stables et beaucoup plus abondants (^{39}K et ^{41}K) qui constituent 93,25% et 6,73 % de cet élément. Le potassium-40 possède la particularité de se désintégrer en deux noyaux différents : dans 89,28 % des cas en calcium-40 par désintégration bêta-moins ; dans 10,72 % des cas en argon-40 par capture électronique suivie

d'un gamma de 1,46 MeV. Ce gamma joue un rôle important car il sert à identifier les désintégrations du potassium-40. Les électrons bêta conduisant au calcium (89,3%) ne sont pas accompagnés de gamma. Ils n'émergent généralement pas du corps vivant ou de la roche où ils sont produits et leurs énergies ne sont pas caractéristiques.

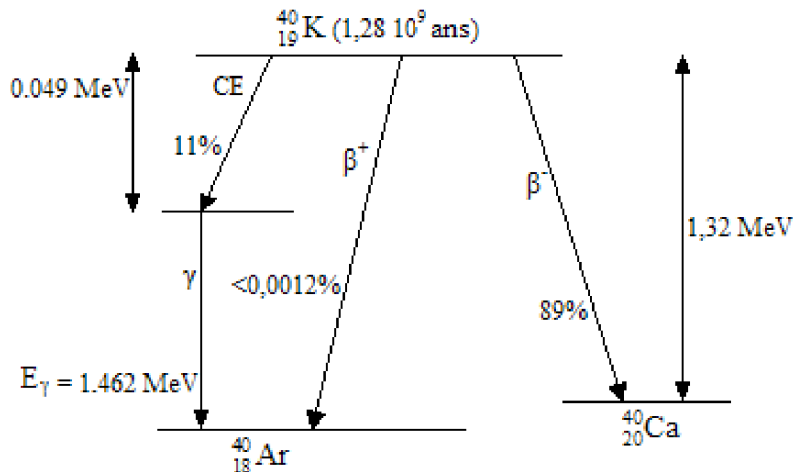


Figure 4. Schéma de désintégration du ^{40}K .

L'équilibre radioactif

La loi temporelle de la radioactivité est donnée par la formule suivante (Blanc, 1981) :

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

Où : N nombre de noyaux désintégrés après un temps t .

N_0 nombre de noyaux non désintégrés à l'instant $t = 0$, c'est le nombre initial de noyaux.

λ la constante de désintégration.

La vitesse de désintégration ou taux de désintégration d'une substance radioactive est définie

par :

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N_0 e^{-\lambda t} = -\lambda N \quad (3)$$

Supposons qu'un corps radioactif X_1 , de période T_1 et de constante λ_1 , donne naissance à un corps X_2 , lui-même radioactif de période T_2 et de constante λ_2 . X_1 et X_2 forment une famille radioactive. De la même façon, pour n corps X_1, X_2, \dots, X_n où X_1 est la substance mère, X_1 à X_n sont les descendants et X_n l'élément stable. Dans le cas d'une famille à deux corps (X_1 et X_2), X_1 comprenant N_1 atomes, se désintègre suivant la loi :

$$N_1(t) = N_0 e^{-\lambda t} \quad (4)$$

et le taux de désintégration est :

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \quad (5)$$

Pour X_2 , les N_2 atomes, qui le forment, suivent une loi qui tient compte de l'apport de nouveaux atomes, par désintégration de X_1 . Le taux de désintégration de N_2 sera :

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (6)$$

La loi de variation de N_2 sera obtenue en résolvant le système d'équations différentielles :

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \quad (7)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (8)$$

L'équation (8) est résolue d'abord sans second membre, puis avec second membre. On a comme condition initiale $N_2 = 0$ pour $t = 0$, on obtient :

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1 N_0}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (9)$$

Trois cas se présentent (Morucci et al., 1981):

1. $T_1 \ll T_2$. Ce qui entraîne $\lambda_1 \gg \lambda_2$ ce qui donne : $N_2 \cong N_0 e^{-\lambda_2 t}$.

Le corps X_2 se forme à partir de X_1 et se détruit par sa propre période.

2. $T_1 \gg T_2$ on en déduit $\lambda_1 \ll \lambda_2$. La relation (6) devient. $N_2 \cong \frac{\lambda_1}{\lambda_2} N_0 e^{-\lambda_1 t} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} N_1$.

Ce qui donne. $N_2 \lambda_2 = \lambda_1 N_1$.

Les noyaux X_2 se désintègrent dès leur formation par destruction de X_1 . Il se détruit autant de X_2 qu'il s'en forme, on arrive à un état d'équilibre. Les activités sont égales, X_2 est en équilibre radioactif avec X_1 .

3. $T_1 \gg T_2$ et $T_1 \gg$ Période d'expérimentation.

Dans ce cas, les atomes X_2 se désintègrent beaucoup plus vite que les atomes X_1 , ce qui veut dire que $\lambda_1 \ll \lambda_2$. Le terme $e^{-\lambda_2 t}$ devient rapidement négligeable devant $e^{-\lambda_1 t}$. On aura donc :

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1 N_0}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t}) \quad (10)$$

En remplaçant par (4) dans (10), on aura la forme:

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1(t) \quad (11)$$

En tenant compte du fait que $\lambda_2 \gg \lambda_1$, on obtient :

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} N_1(t) \quad (12)$$

Soit

$$\lambda_2 N_2(t) = \lambda_1 N_1(t) \quad (13)$$

Les activités sont égales. Il se détruit donc à chaque seconde autant d'atomes X_2 qu'il s'en forme. On peut généraliser les résultats précédents en les appliquant au cas de la filiation de plus de deux substances constituant une famille radioactive dont l'élément initial a une vie beaucoup plus longue que tous ses descendants. Cette famille tend vers un état d'équilibre tel que tous les descendants décroissent à la même vitesse que l'élément initial. A l'équilibre radioactif, les activités de tous les membres de la famille sont égales.

$$\lambda_1 N_1(t) = \lambda_2 N_2(t) = \dots = \lambda_n N_n(t) \quad (14)$$

Dans ce cas, la décroissance de X_1 ne peut être appréciée et son activité nous semble constante. Tous les dérivés de X_1 décroissent à la vitesse de X_1 , les activités sont égales et gardent la même valeur constante de l'équilibre appelé "équilibre séculaire".

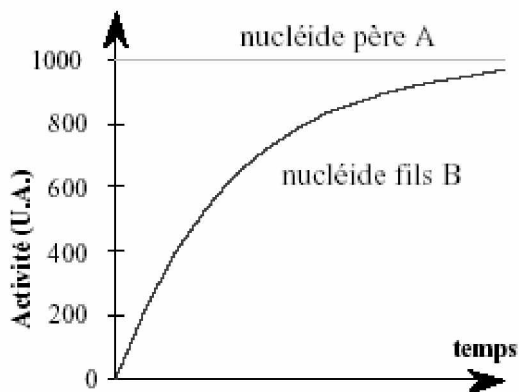


Figure 5. La possibilité pour que l'élément B atteigne l'élément A.

Les unités de mesures de la radioactivité

Le Becquerel, le Gray, le Sievert sont les trois unités qui mesurent la radioactivité, son énergie et ses effets

ü Le Becquerel (Bq)

Il permet de mesurer le niveau de radioactivité, également appelé activité. Il correspond au nombre d'atomes qui se désintègrent par unité de temps (seconde).

L'ancienne unité était le Curie (Ci) : $1 \text{ Ci} = 3,7.10^{10} \text{ Bq}$, en référence au nom des découvreurs du radium (Pierre et Marie Curie).

Ü Le Gray (Gy)

Il permet de mesurer la quantité d'énergie absorbée (dose absorbée) par de la matière (organisme ou objet) exposée à des rayonnements ionisants. 1 Gray correspond à une énergie absorbée de 1 joule par kilo de matière.

L'ancienne unité était le rad : $1 \text{ Gy} = 100 \text{ rad}$.

Ü Le Sievert (Sv)

Il permet d'évaluer les effets biologiques des rayonnements d'origine naturelle ou artificielle sur l'homme, en fonction du type de rayonnement.

L'ancienne unité était le rem : $1 \text{ Sv} = 100 \text{ Rem}$.

Grandeur mesurée	Définition	Unités
Activité	Nombre de désintégrations par seconde	Becquerel (Bq)
Dose absorbée	Quantité d'énergie transférée à la matière	Gray (Gy)
Equivalent de dose	Effet des rayonnements sur l'organisme	Sievert (Sv)

La radioactivité artificielle

La population est exposée directement et indirectement à des sources de radioactivité artificielles, il suffit de penser aux retombées des explosions nucléaires en atmosphère. Mais il y en a quelques autres.

Parmi les sources directes il y a les instruments médicaux de diagnostic et de radiothérapie. Les sources indirectes de radioactivité sont toutes celles résultant de la libération de radionucléides des suites du fonctionnement normal ou des accidents qui surviennent dans les installations nucléaires civiles et militaires. Un large spectre de produits de fusion et de fission fut libéré durant ces essais mais les dépôts actuels sont essentiellement limités à des radionucléides à longue vie tels que le césium-137 et le strontium-90 dont la période est voisine de 30 ans.

Si on exclut les accidents survenus dans les centrales nucléaires, la seconde source de radioactivité artificielle comprend la production d'énergie destinée à des fins civiles et militaires (y compris tout le cycle de l'uranium depuis son extraction dans les mines, son enrichissement, son utilisation dans les réacteurs, son retraitement, etc), la fabrication des armes nucléaires, la production des radioisotopes, la réentrée atmosphérique des satellites

munis de pile à combustible, les sources industrielles de rayonnements (radiographie industrielle y compris nucléaire), etc.

L'accident de Tchernobyl survenu en 1986 fut évidemment une dramatique exception à cette dose d'exposition artificielle aux rayonnements ionisants. Pour un dépôt donné de césium-137, la dose reçue par la population a largement varié en fonction de nombreux facteurs : le lieu, les habitudes des populations (le temps passé à l'extérieur, le type de bâtiment, les habitudes alimentaires, etc), l'âge des habitants, les caractéristiques des surfaces et en particulier les terres et la végétation sur lesquelles les poussières se sont déposées, le climat, etc.

GENERALITES SUR L'URANIUM

Propriétés physico chimiques

a. L'uranium élémentaire

La structure électronique de l'uranium ($5f^3 6d^1 7s^2$, numéro atomique 92) met en évidence six électrons capables de participer à des liaisons chimiques. En plus du degré d'oxydation 0 correspondant à l'uranium métallique, seuls les degrés d'oxydation de +III à +VI sont connus (Untereiner 2008).

b. Propriétés physiques de l'uranium

L'uranium est un métal gris blanc malléable et ductile de densité de 18,7 et dont le point de fusion est de 1130°C. Il est fortement électropositif et donc très réactif à l'oxygène. Sous forme de fines particules, l'uranium est pyrophorique à température ambiante. Lorsqu'il brûle, il donne formation à des oxydes mixtes $U_x O_y$.

c. Propriétés nucléaires

L'uranium est un radioélément qui possède trois principaux isotopes naturels (^{234}U , ^{235}U et ^{238}U) qui se désintègrent principalement par rayonnement alpha. Il possède également plusieurs isotopes artificiels. Le tableau 1 nous indique les périodes, les activités spécifiques et l'abondance naturelle des principaux isotopes de l'uranium utilisé ou étudié par l'homme.

Isotope	Période (années)	Abondance naturelle (%)	Mode	Énergie des rayons émis (MeV)		
				α	β^-	γ
^{234}U	240 000	0.0055	α	4.8	0.013	0.67
^{235}U	700 000 000	0.72	α	4.6	0.049	0.185
^{238}U	4 500 000 000	99.3	α	4.2	0.010	0.114

Tableau 1. Périodes radioactives et abondance naturelle des principaux isotopes de l'uranium

d. Chimie de l'uranium en solution

La chimie de l'uranium en solution est complexe du fait de nombreuses propriétés de réaction du radionucléide et de l'hydrolyse des ses ions avec la formation d'espèces polynucléaires (Madic et Genet, 2001).

Ces différentes propriétés sont principalement régies par le pH et le potentiel d'oxydoréduction du milieu. Ces potentiels d'oxydoréduction dans 1M d' HClO_4 , qui est un solvant neutre, sont présentés en figure 6 :

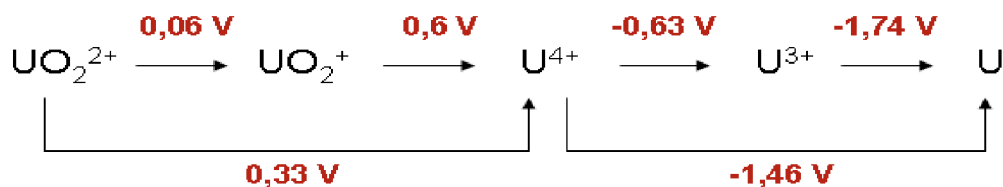


Figure 6. Potentiels d'oxydoréduction de l'uranium en solvant HClO_4 1M à température ambiante.

L'uranium peut exister en solution aqueuse sous quatre états d'oxydation différents : de U(III) à U(VI) (Untereiner 2008).

- L'uranium III existe en solution en milieu acide sous forme de cation U^{3+} . L'ion U^{3+} est un puissant agent réducteur. Il réduit l'eau H_2O en dihydrogène H_2 . Il est obtenu par réduction de l'uranyle UO_2^{2+} . Les solutions d' U^{3+} sont instables car elles sont rapidement oxydées par l'eau

au degré d'oxydation +IV. En milieu alcalin, U^{3+} est hydrolysé en UOH^{2+} et on observe une précipitation de $U(OH)_3$.

- L'uranium IV existe en milieu très acide sous forme de cation U^{4+} . En présence de dioxygène, U^{4+} est oxydé au degré d'oxydation +VI. L'hydrolyse de U^{4+} a lieu dès à pH inférieur ou égal à 1. Le produit d'hydrolyse le plus simple est UOH^{3+} . Des espèces polynucléaires se forment aux pH plus élevés.
- L'uranium V n'existe pas sous forme U^{5+} car cet ion est facilement hydrolysable quel que soit le pH. La forme principale de l'uranium à cet état d'oxydation est UO_2^+ qui est extrêmement sensible à la dismutation en U(IV) + U(VI).
- L'uranium VI n'existe pas en solution sous la forme U^{6+} mais sous forme d'oxocation uranyle UO_2^{2+} quel que soit le pH. Le degré d'oxydation VI est le plus étudié et le mieux connu car il est le plus stable. L'hydrolyse de U(VI) donne des espèces mononucléaires comme UO_2OH^+ ou polynucléaires comme $(UO_2)_2(OH)_2^{2+}$. Le taux d'hydrolyse dépend du pH mais également de la concentration en uranium.

L'hydrolyse de l'uranium est variable selon l'ion considéré et l'état d'oxydation de cet ion.

La chimie de complexation de l'uranium en solution aqueuse est ainsi dominée par l'interaction avec des ligands oxygénés.

En tant qu'acide, l'ion UO_2^{2+} est susceptible de s'associer en solution avec la matière organique dissoute (acides humiques), les acides organiques (citrate, malate...), les carbonates, les sulfates ou les phosphates.

L'URANIUM DANS L'ENVIRONNEMENT

Origine

L'uranium se trouve à l'état naturel dans un certain nombre de minéraux comme la pechblende et l'uranite ou dans des roches phosphatées et des granites.

L'uranium est un constituant trace de la croûte terrestre, sa teneur moyenne (3 à 4ppm) est supérieure à celle de l'argent (100 ppb) ou l'or (10 ppb) (Untereiner 2008). Il existe cependant une grande variabilité de concentration selon les matériaux (jusqu'à 350 ppm pour les roches phosphatées). La concentration moyenne de l'uranium dans les océans est de 3ppb.

L'uranium présent dans l'environnement peut de plus avoir une origine humaine (Paulin 1997) : par exemple, l'utilisation en agriculture d'importantes quantités de phosphates naturels qui peuvent contenir de fortes concentrations en uranium (but de cette thèse). Ceux-ci sont utilisés pour la fertilisation des cultures et pour l'élaboration des compléments alimentaires pour le bétail et ils enrichissent donc les sols agricoles en uranium. Les activités minières et industrielles peuvent également être à l'origine de rejets de déchets dans l'environnement. Les teneurs dans les sols, eaux et végétaux de ces sites sont plus importantes que les teneurs naturelles. L'uranium se complexe avec les autres composants de l'environnement pour donner des espèces plus ou moins solubles et donc plus ou moins mobiles.

L'ion uranyle forme différents complexes avec les phosphates en fonction du pH : $UO_2H_2PO_4^+$, $UO_2HPO_4^{aq}$ et $UO_2PO_4^-$ (Michel, 1992). Il existe d'autres espèces de phosphate d'uranyle mais ces trois formes prédominent. Les complexes de phosphates d'uranyle sont cependant très peu solubles et précipitent rapidement. La présence de phosphates dans un système contenant de l'U(VI) provoque surtout la formation de précipités à pH supérieur à 6 où la concentration en uranium et en phosphates varient. Il a été ainsi montré que la complexation de l'uranium par les phosphates diminuait sa biodisponibilité (Untereiner 2008).

Radiotoxicité

La radiotoxicité de l'uranium naturel est due aux radiations ionisantes issues de la décroissance physique des isotopes de l'uranium, ainsi que de leurs descendants. Un des paramètres permettant d'estimer l'importance de la radiotoxicité d'une source radioactive est son activité spécifique. Or, la radioactivité spécifique de l'uranium naturel est faible. Il est donc généralement considéré qu'en présence de cet uranium naturel, l'effet des radiations ionisantes est négligeable par rapport à l'effet chimique. Cependant, comme l'élément est capable de remplacer durablement le calcium dans les structures osseuses, il peut apparaître des dommages sur le long terme à ce niveau. En effet, l'uranium fixé sur l'os ne sera pas relégué et éliminé. Il provoquerait l'apparition d'ostéosarcomes (Untereiner 2008).

La radiotoxicité pulmonaire est négligeable et n'apparaît que lorsque l'organisme est soumis à une exposition importante et longue de particules d'uranium. Le tissu rénal est considéré comme peu radiosensible et l'uranium est éliminé assez rapidement pour ne pas entraîner de tels types de dommages (Untereiner 2008).

Les complexes de phosphates d'uranyle

Plusieurs complexes de phosphates d'uranyle ont été étudiés par spectroscopie d'absorption X. Les phosphates peuvent être organiques et inorganiques.

Il existe une différence entre les complexes de phosphate d'uranyle organique et de phosphate d'uranyle inorganique. Elle se situe surtout au niveau du nombre d'oxygène équatoriaux. L'uranium pourrait être entouré de groupes phosphates similaires mais dans un arrangement différent que le phosphate d'uranyle inorganique. La figure ci dessous montre une représentation schématique d'un complexe de phosphate d'uranyle.

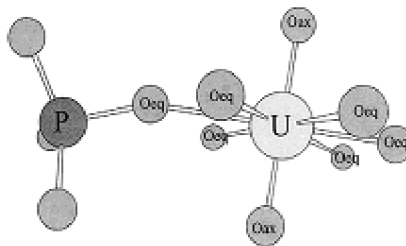


Figure 7. Représentation schématique d'un complexe de phosphate d'uranyle. (Untereiner 2008).

Chapitre II

DETECTION

INTRODUCTION

Les systèmes de détection utilisés en physique nucléaire reposent dans la plupart des cas sur les propriétés de l'interaction des particules détectées avec le matériau constituant le détecteur. La compréhension du fonctionnement d'un détecteur nécessite donc de connaître ces processus d'interaction. C'est la raison pour laquelle ce chapitre regroupe à la fois les notions de base concernant l'interaction rayonnement-matière et celles concernant le principe de fonctionnement du détecteur semi-conducteur.

Le rayonnement gamma

Le rayonnement, mis en évidence par le physicien français Paul Villard en 1900, se trouve à l'extrême du spectre électromagnétique, à des énergies au-delà de 10 keV. De même nature physique que le rayonnement X, il se distingue de ce dernier par son origine : un rayon γ est produit par une transition nucléaire tandis qu'un rayon X est émis lors d'une transition entre couches électroniques d'un atome. (Pirard, 2006).

Les photons se comportent dans la matière de manière radicalement différente des particules chargées. Comme ils ne portent pas de charge électrique, ils ne subissent pas l'interaction coulombienne à longue portée avec les électrons du cortège atomique, qui dans le cas des particules chargées conduit à une perte d'énergie continue, progressive et très probable.

Les photons ont avec la matière des interactions qui modifient radicalement la trajectoire et l'énergie du photon incident, ou bien conduisent à sa disparition complète. De plus, ces interactions sont rares et les photons ont une probabilité non nulle de traverser n'importe quelle épaisseur de matière sans interagir. L'efficacité de détection des photons n'est donc pas de 100% (Hustache Ottini et al., 2001).

Les notions de parcours et de ralentissement définies dans le cas des particules chargées n'ont donc aucun sens pour les photons. Dans leur cas, on parlera de libre parcours moyen et d'atténuation. Soit σ la section efficace totale d'interaction d'un photon avec un atome du milieu considéré. La variation d'intensité d'un faisceau à la traversée d'une épaisseur dx .

$$dI = I \times \sigma N \times dx$$

Où N est le nombre d'atomes de masse atomique A par cm^3 . L'intensité du faisceau de photons varie donc avec l'épaisseur de la manière suivante :

$$I = I_0 e^{-\mu x}$$

où $\mu = \sigma N$.

μ est, le coefficient d'absorption total. Le libre parcours moyen λ , défini comme la distance moyenne parcourue avant une interaction, lui est relié par :

$$\lambda = \frac{\int_0^{\infty} x e^{-\mu x} dx}{\int_0^{\infty} e^{-\mu x} dx} = \frac{1}{\mu}$$

Il correspond à l'épaisseur de matériau au bout de laquelle le flux incident est atténué d'un facteur $1/e$. Cette atténuation résulte de divers types d'interaction, avec chacun un coefficient d'absorption. μ est la somme de tous les coefficients d'absorption des divers processus d'interaction possibles, dont les principaux sont détaillés dans les paragraphes suivants.

Ces mécanismes ont pour conséquence la mise en mouvement de particules chargées, électrons et positrons. La détection des photons se décomposent donc en deux phases :

- une première phase de "conversion" en particules chargées. Le matériau employé devra donc favoriser une conversion efficace, avec une absorption maximale.
- une phase de détection des particules chargées secondaires produites. Le matériau doit donc présenter les propriétés nécessaires à cette détection (Hustache Ottini et al., 2001).

La spectroscopie gamma : principe et applications

La spectroscopie de rayonnement gamma consiste à mesurer l'énergie et à compter le nombre de photons émis d'un échantillon de manière naturelle (radioactivité) ou artificielle durant ou après une irradiation par des neutrons ou des protons) pendant une durée donnée. A partir de l'histogramme enregistré ou spectre, il est alors possible d'identifier différents radioéléments (analyse qualitative) et de déterminer leur concentration (analyse quantitative) dans l'échantillon étudié (Pirard, 2006).

La spectroscopie gamma est aujourd'hui utilisée pour identifier et quantifier les éléments radioactifs dans de nombreuses applications, pas uniquement dans la physique des hautes énergies. Citons en particulier :

- La cartographie et la prospection de gisements en géophysique. Depuis les années 70, la spectroscopie gamma est systématiquement utilisée dans des levés aériens ou in situ pour la cartographie géologique et la prospection minérale. La méthode repose sur la mesure des abondances absolues et relatives des radioéléments K, U et Th. Au départ utilisé exclusivement pour la recherche de gisements uranifères, la technique sert aujourd'hui à la prospection de nombreux autres minerais. Les trois radioéléments K, U et Th jouent en effet le rôle d'indicateurs géochimiques en étant associés aux éléments recherchés de manière

directe (U, Th, Sn, W, Nb, Zr et terres rares) ou indirecte (minéralisation de Au, Ag, Hg, Co, Ni, Bi, Cu, Mo, Pb ou Zn).

- La protection de l'environnement. De la même manière, la spectroscopie gamma permet d'analyser et de cartographier la pollution produite par des sites nucléaires (stockage de déchets, centrales, etc.) ou à la suite d'essais ou d'incidents nucléaires (fusion du réacteur de Tchernobyl en 1986, écrasement de la sonde soviétique Cosmos 954 à propulsion nucléaire en 1978 dans le nord du Canada).

- La datation d'échantillons. La désintégration du césium ^{137}Cs ($E=661\text{ keV}$, $T_{1/2}=30\text{ ans}$) provenant des activités nucléaires (retombées radioactives à la suite d'essais ou d'accidents depuis les années 50) peut être utilisée pour la datation d'échantillons sur de courtes durées. Requérant un spectromètre de haute résolution et un très faible niveau de bruit de fond, cette technique est couramment utilisée dans l'étude de la sédimentation, de l'érosion des sols.

- L'analyse non destructive de la composition chimique. La méthode NAA (Neutron Activation Analysis) permet de mesurer de manière non destructive les concentrations de plusieurs dizaines d'éléments chimiques dans divers matériaux (roches, minéraux, sols, produits industriels, etc.).

Interaction du rayonnement gamma avec la matière

Lorsqu'ils traversent la matière, les photons peuvent subir différents types d'interactions en fonction de leur énergie et du milieu en présence (densité, type d'atome, etc.) : l'effet photoélectrique, la production de paires électron-positron, la diffusion Compton (dite aussi inélastique ou incohérente), la diffusion Rayleigh (dite aussi élastique ou cohérente), la photodésintégration ou encore la diffusion nucléaire résonante (ou effet Mössbauer).

Parmi ces processus, seuls les trois premiers sont significatifs et décrits ci-dessous :

L'effet photoélectrique

Dans une collision photoélectrique, le photon incident cède totalement son énergie $h\nu$ à un électron fortement lié de l'atome cible. Le photoélectron est éjecté (figure 8.a) avec une énergie cinétique

$$E_e = h\nu - E_l$$

Où E_l est l'énergie de liaison de l'électron dans l'atome. Le niveau d'énergie vacant (généralement dans une couche K ou L) est alors rempli à partir de niveaux supérieurs via des transitions (émissions X caractéristiques ou électrons d'Auger) (Pirard 2006).

Cette énergie E_l est de l'ordre du keV dans les matériaux légers et de la dizaine de keV pour les milieux de Z élevé. L'effet photoélectrique est donc une réaction à seuil puisque le photon doit apporter une énergie au moins égale à E_l (Hustache Ottini et al., 2001). La section efficace de cette interaction dépend du numéro atomique de la cible (c'est-à-dire de la taille du nuage électronique) et de l'énergie du photon incident (Pirard, 2006) :

$$\sigma_{EP} = C \cdot \frac{Z^4}{E_\gamma^3} \quad (15)$$

Où C est une constante.

L'effet photoélectrique est prépondérant pour les rayons de basse énergie ($E \leq 0.2$ MeV).

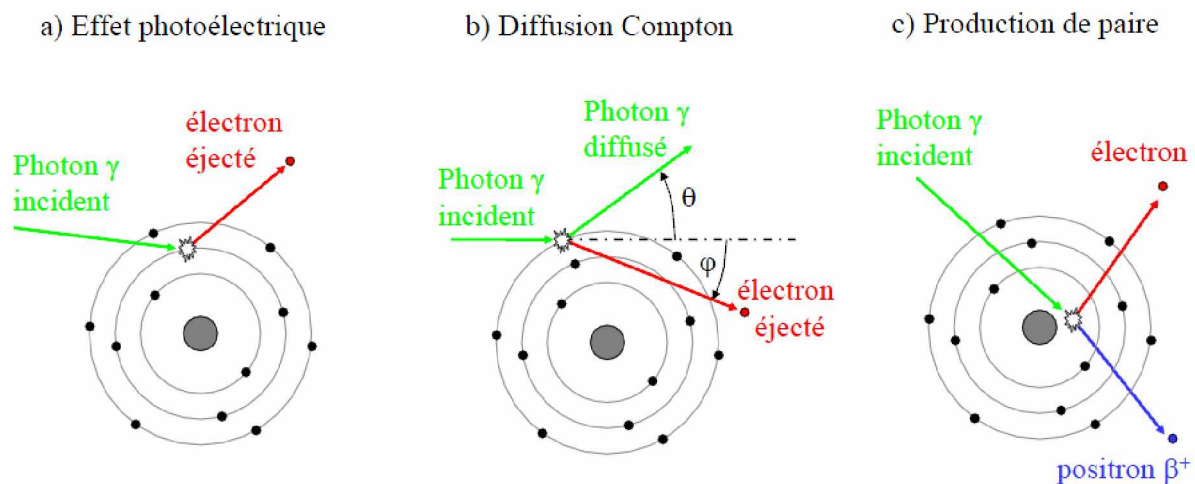


Figure 8. Principales interactions des photons avec la matière (Pirard, 2006).

La diffusion Compton

Il s'agit de l'interaction d'un photon d'énergie E_γ avec un électron libre ou peu lié (énergie de liaison $E_l \ll E_\gamma$). L'interaction, bien qu'inélastique au sens strict, peut être décrite comme une collision élastique (figure 8 b), où l'électron recule avec une énergie cinétique E_e et le photon gamma est diffusé avec une énergie E'_γ . Les deux grandeurs E'_γ et $E_e = E_\gamma - E'_\gamma$ peuvent se calculer par les relations de conservation :

$$E'_\gamma = \frac{E_\gamma}{1 + \frac{E_\gamma}{m_e \cdot c^2} (1 - \cos\theta)} \quad (16)$$

Où m_e est la masse au repos de l'électron ($m_e \cdot c^2 = 511 \text{ keV}$) et θ l'angle de diffusion du photon gamma, mesuré par rapport à sa direction d'incidence.

La probabilité pour un photon de subir une diffusion Compton augmente linéairement avec le nombre Z d'électrons disponibles par atome cible. La diffusion Compton est donc favorisée dans les matériaux lourds sauf exception des métaux de transition comme le cuivre (Courtine, 2007).

Le spectre se présente sous la forme d'un continuum, appelé fond Compton, s'étendant de 0 à l'énergie maximale des électrons, où le taux de comptage chute rapidement pour former le front Compton (Figure 9) (Courtine, 2007). Cette forme est caractéristique et reflète la distribution angulaire des photons diffusés, qui est donnée par la formule de Bethe, Klein et Nishina :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = Zr_0^2 \left(\frac{1}{1 + \alpha(1 - \cos\theta)} \right)^2 \left(\frac{1 + \cos^2\theta}{2} \right) \left(1 + \frac{\alpha^2(1 - \cos\theta)^2}{(1 + \cos^2\theta)[1 + \alpha(1 - \cos\theta)]} \right) \quad (17)$$

Où $\alpha = hv/mc^2$ et r_0 est le rayon classique de l'électron. La probabilité de diffusion Compton augmente donc linéairement avec Z , soit avec le nombre d'électrons susceptibles d'y participer. Cette distribution angulaire est très focalisée vers l'avant dès lors que l'énergie des photons incidents dépasse 500 keV (Hustache Ottini et al. 2001).

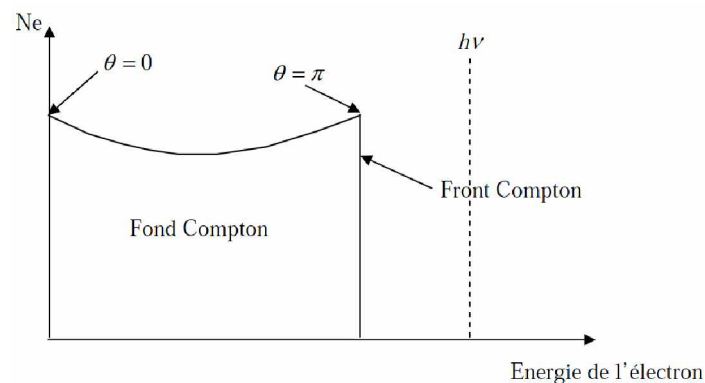


Figure 9 : Spectre en énergie d'électrons suite à des diffusions Compton (Ne est le nombre d'électrons sur lesquels le photon a réalisé une diffusion Compton).

La production de paire

Dans un champ électrique comme celui d'un noyau atomique, un photon gamma peut être totalement absorbé et son énergie partiellement réémise sous forme d'une paire électron-

positron. Cette conversion requiert que l'énergie E du photon incident soit supérieure au seuil de $2 \cdot m_e \cdot c^2 = 1022 \text{ keV}$.

L'énergie résiduelle $E - 1022 \text{ keV}$ se retrouve sous forme d'énergie cinétique répartie entre les deux particules. La section efficace de ce processus σ_{PP} augmente proportionnellement avec le carré du nombre atomique Z et avec l'énergie E du photon incident (Pirard 2006) Il est intéressant du point de vue de la détection et de la mesure de l'énergie des photons incidents car la totalité de l'énergie est transférée à la paire e^+e^- , mais il faut tenir compte de l'annihilation du positron en fin de son parcours. Ce mécanisme conduit comme on l'a vu à la production de deux photons de 511 keV , émis à 180° et qui sont susceptibles de s'échapper du détecteur. La mesure d'énergie ne donnera $h\nu$ qu'à condition que ces photons interagissent à leur tour dans le détecteur et y déposent la totalité de leur énergie. Tous les scénarios sont envisageables pour ces deux photons (effet photoélectrique, effet Compton simple ou multiple, création de paire ...), ce qui complique d'autant les spectres en énergie (Hustache Ottini et al. 2001).

La coexistence des trois modes d'interaction décrits précédemment conduit à l'apparition de différentes structures dans les spectres en énergie mesurés, selon que les produits de réaction sont absorbés ou non dans le milieu détecteur. Un cas extrême est celui du détecteur de très grande taille, dans lequel tout est absorbé : le spectre en énergie ne comporte qu'un seul pic, correspondant à l'énergie des photons incidents, dans lequel se mélangent tous les types d'événements (Hustache Ottini et al. 2001).

Section efficace d'interaction et coefficient d'atténuation

La probabilité pour un photon incident de déposer partiellement ou totalement son énergie dans la matière par un processus donné peut être exprimée par une section efficace atomique exprimée en cm^2 ou en barns. La probabilité totale σ pour qu'un photon d'énergie donnée soit absorbé par un atome peut être exprimée par la somme des sections efficaces σ_{EP} , σ_{DC} et σ_{PP} définies pour chaque processus d'interaction (respectivement l'effet photoélectrique, la diffusion Compton et la production de paire) :

$$\sigma = \sigma_{EP} + \sigma_{DC} + \sigma_{PP} \quad (18)$$

La probabilité d'interaction du photon peut aussi être exprimée macroscopiquement par le coefficient d'atténuation linéaire, μ (en cm^{-1}), produit de la section efficace par la densité atomique n_a (en cm^{-3}) :

$$\mu = \sigma \cdot n_a = \sigma \cdot \frac{\rho \cdot N_A}{M_{mol}} \quad (\text{Avec de même } \mu = \mu_{EP} + \mu_{DC} + \mu_{PP}) \quad (19)$$

Où ρ et M_{mol} sont la masse volumique et la masse molaire du matériau considéré et N_A le Nombre d'Avogadro (Pirard 2006).

Principe de fonctionnement du détecteur semi-conducteur

Le principe de la détection d'un photon gamma repose sur la mesure de l'énergie qu'il a cédée (partiellement ou totalement) au matériau sensible via un des mécanismes d'ionisation considérés précédemment. Cette section présente le type de détecteur utilisé en spectroscopie gamma dans le domaine d'énergie de 20 keV à 10 MeV (Lyoussi 2010): les semi-conducteurs. Un aperçu général est également donné de la chaîne électronique permettant de traiter le signal, de l'impulsion électrique générée dans la partie sensible à l'acquisition du spectre gamma.

Les semi-conducteurs

Dans un solide cristallin, les électrons ne peuvent occuper que des niveaux d'énergie situés à l'intérieur de bandes permises comme les bandes de valence et de conduction. Par définition, le passage des électrons de la bande de valence à celle de conduction est systématique pour un conducteur et impossible pour un isolant ; dans le cas intermédiaire, dit semi-conducteur, cette transition n'a lieu que suite à une excitation (agitation thermique ou particule ionisante). L'écart entre bandes de valence et de conduction, noté E_g , est typiquement de l'ordre de l'électronvolt pour un semi-conducteur (Pirard 2006).

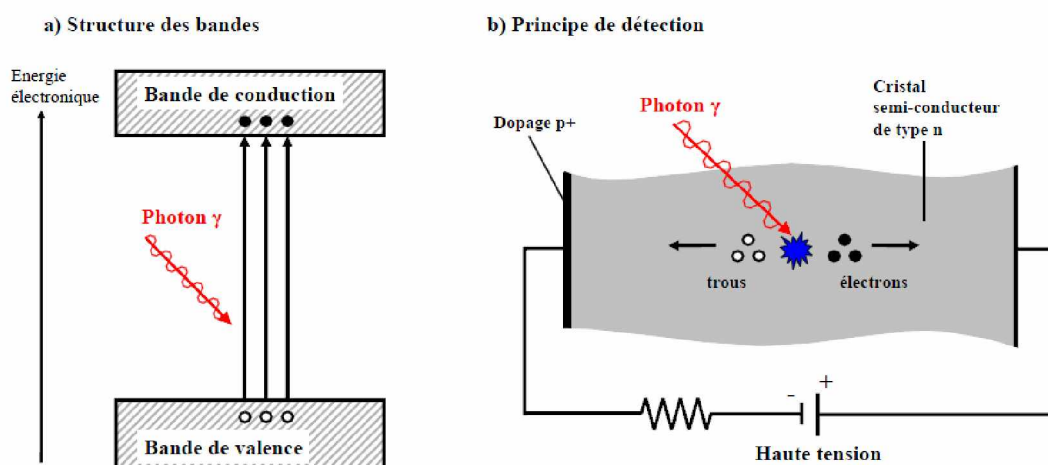


Figure 10. Principe du semi-conducteur : structure des bandes et fonctionnement (Pirard 2006)

Si un champ électrique est appliqué dans le semi-conducteur, les électrons présents dans la bande de conduction (et les trous correspondants dans la bande de valence) deviennent mobiles et créent un courant. Le dépôt d'une quantité d'énergie E par un rayonnement ionisant peut se traduire par la création d'un nombre proportionnel de paires électrons-trous:

$$N_{eh} = \frac{E_{\gamma}}{W_{eh}} \quad (20)$$

Où W_{eh} est l'énergie nécessaire pour créer une paire électron-trou. Afin de drainer les porteurs de charge jusqu'aux bornes du semi-conducteur (électrodes de collecte) sans recombinaison, il est nécessaire de former une zone désertée de tout porteur libre. Ce type de zone, dite zone de déplétion, est obtenue avec les semi-conducteurs par une polarisation inverse des jonctions PN.

Parmi les principales propriétés des semi-conducteurs les plus couramment utilisés, le germanium possède la bande interdite la plus étroite et permet de créer le plus grand nombre de porteurs de charge pour un dépôt d'énergie donné, minimisant ainsi la fluctuation statistique dans la mesure. Par ailleurs, seul le germanium peut être utilisé avec des volumes importants (plusieurs dizaines de cm^3). Sa densité et son nombre atomique élevés en font le semi-conducteur le plus approprié pour la détection des rayonnements ionisants dans une plage d'énergie allant de la dizaine de keV à la dizaine de MeV (Pirard 2006).

Matériau	Ge
Nombre atomique Z	32
Masse volumique ρ [g/cm^3]	5.32
Energie de la bande interdite E_g [eV]	0.66
Energie par électron-trou W_{eh} [eV]	2.98
Mobilité des électrons μ_e [$\text{cm}^2/\text{V}/\text{s}$]	3900
Mobilité des trous μ_h [$\text{cm}^2/\text{V}/\text{s}$]	1900

Toutes les valeurs indiquées correspondent à la température $T=80^\circ \text{K}$.

Tableau 2. Propriétés du semi-conducteur Ge.

Si une faible largeur de bande interdite permet de mesurer l'énergie de la particule incidente avec le plus de précision, elle requiert cependant une température de fonctionnement suffisamment basse afin de minimiser les effets dus à l'agitation thermique comme le bruit sur le signal et l'augmentation du courant de fuite (Pirard 2006).

Semi-conducteur	Largeur de la bande interdite E_g (à 300 K)	Énergie de création de paire
Si	1.12 eV	3.61 eV (300 K)
Ge	0.67 eV	2.96 eV (90 K)
Diamant C	5.47 eV	13.2 eV (300K)
GaAs	1.43 eV	4.27 eV
CdTe	1.5 eV	4.43 eV (300 K)
HgI ₂	2.1 eV	4.15 eV

Tableau 3. Récapitulatif des largeurs de gap et de l'énergie de création de paire pour différents matériaux semi-conducteurs (Hustache Ottini et al. 2001).

Détecteurs germanium

Le germanium est largement utilisé en physique nucléaire pour la détection de photons. Avec ce matériau, il est possible d'obtenir des profondeurs de déplétion et donc de détection plus importantes qu'avec le silicium et donc des détecteur plus efficaces. Son Z plus élevé le rend, de plus, plus approprié. Les diverses configurations géométriques possibles de détecteurs au germanium coaxiaux sont présentées dans la figure 11.

L'avantage majeur du germanium vis à vis des scintillateurs est son excellente résolution en énergie, indispensable pour les expériences dans lesquelles les spectres comportent un grand nombre de raies (Hustache Ottini et al. 2001).

Figure 11. Détecteurs coaxiaux à base de germanium de type n et de type p.

Chaîne de mesure : du photon détecté au signal numérique

Les semi-conducteurs se distinguent par la conversion de l'énergie libérée par le photon gamma incident. Il s'agit, donc, de collecter au moyen d'une haute tension, une quantité de charges électriques proportionnelle à l'énergie déposée par le photon. La figure 12 présente la chaîne de traitement de ce signal dans le cas d'un détecteur semi-conducteur de type HPGe. Comme l'indique la figure, le cristal de germanium peut être assimilé à une diode du point de

vue électrique, caractérisée comme toute autre diode par un courant de fuite, une résistance, etc.

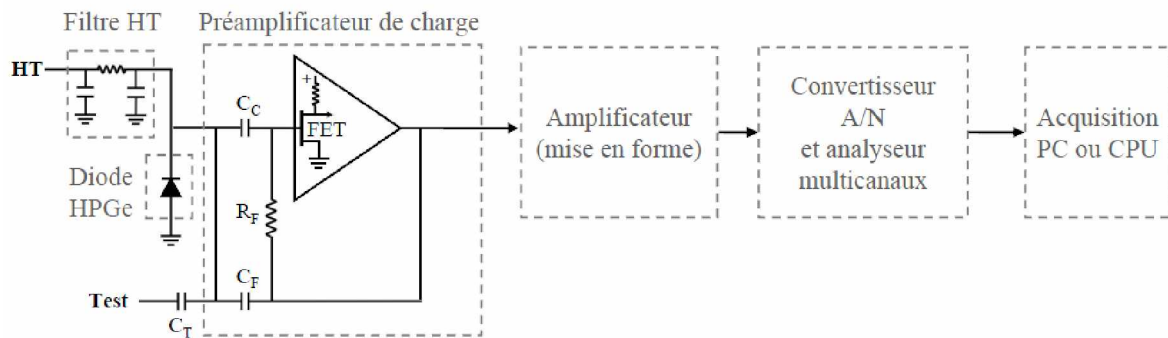


Figure 12. Schéma de la chaîne électronique et traitement du signal pour un spectromètre gamma de type HPGe (Pirard, 2006).

Les porteurs de charge sont collectés par un préamplificateur de charge dont les fonctions essentielles sont la conversion de la charge en tension électrique, l'amplification du signal et sa mise en forme. L'amplitude du signal en tension généré en sortie du préamplificateur est donné par :

$$V_{out} = \frac{Q}{C_F} = \frac{1}{C_F} \cdot \frac{E_\gamma \cdot e}{W_{eh}} \quad (21)$$

Où C_F (en Farad) est la capacité de contre-réaction et Q (en Coulombs) la quantité de charges libérées par le semi-conducteur. Le niveau de sensibilité sur la tension de sortie du préamplificateur varie généralement de 0.01 à 10 mV/keV. Le préamplificateur de charge constitue un élément important dans la chaîne de détection car il conditionne généralement les performances de l'ensemble (Pirard 2006).

Le signal en tension est ensuite traité par l'amplificateur principal (ou amplificateur de mise en forme) où il est mis en forme et amplifié de manière à optimiser le rapport S/B. L'amplificateur doit répondre aux mêmes exigences que celles requises pour le préamplificateur en ce qui concerne le bruit, la linéarité et la stabilité. L'analyse de l'amplitude de l'impulsion est effectuée par un analyseur multi-canal. Le choix du nombre de canaux nécessaire pour l'acquisition dépend de la résolution du détecteur et de la plage d'énergie que l'on désire analyser. Pour un détecteur de germanium, la haute résolution en énergie requiert généralement un codage sur 8192 canaux ou 16384 canaux pour couvrir une plage de 0 à 8 MeV.

Associé à l'analyseur, un processeur (PC d'acquisition) enregistre l'événement en incrémentant le canal correspondant. Le spectre ainsi collecté est analysé directement. Tout à fait à la fin,

il s'agit pour l'utilisateur de calibrer le spectre en énergie (conversion canal-énergie), soit à partir de raies présentes dans le spectre, soit à partir d'une loi de calibration préétablie.

Notons enfin qu'à côté de la chaîne qui vient d'être décrite, il existe une série de mesures permettant de contrôler les performances du détecteur de germanium. Il s'agit en particulier de mesurer la température et le courant de fuite de la diode afin d'étalonner la réponse de la chaîne électronique en générant un signal test simulant une impulsion provenant du semi-conducteur.

Le convertisseur analogique-numérique et l'analyseur multi-canaux

A la sortie de l'amplificateur, on a un signal continu. Pour l'acquisition, il est préférable de travailler avec des grandeurs discrètes, c'est-à-dire qui ne peuvent prendre qu'un ensemble fini de valeurs. C'est pourquoi on utilise un convertisseur analogique-numérique (ADC), qui transforme l'amplitude du signal électrique fourni par l'amplificateur en un nombre qui est alors proportionnel à l'énergie déposée dans le cristal (Lyoussi 2010). Cette opération nécessite entre 0,8 et 6 μs (Canberra). La sortie de l'ADC est enregistrée dans une mémoire qui possède autant d'adresses que le maximum de numéro de canaux servant à découper le spectre final. Il y a au total 8192 canaux disponibles pour l'acquisition.

L'analyseur multi-canaux sert à collecter et enregistrer les événements issus de l'ADC en les classant. Dès qu'un signal a été analysé par l'ADC, l'adresse mémoire dans laquelle il a été enregistré est bloquée et son contenu est incrémenté d'un coup (Canberra). Cela permet d'obtenir un histogramme en temps réel dans lequel l'énergie déposée dans le cristal est reliée au numéro de canal et le nombre de coups dans un canal donné est proportionnel au nombre de photons ayant déposé la même énergie dans le cristal. Cette opération nécessite entre 1,5 et 3 μs (Canberra).

Le logiciel de traitement et d'analyse du signal

Le logiciel utilisé dans l'équipe est Genie2000, logiciel commercialisé par la société Canberra (Canberra).

Étalonnage

Genie2000 permet de visualiser en temps réel la sortie de l'analyseur multi-canaux, à savoir un spectre avec en abscisse le numéro de canal et en ordonnée le nombre de coups dans ce canal. De manière à pouvoir identifier les désintégrations radioactives mises en jeu, le spectre doit être étalonné en énergie. Cela consiste à établir une relation polynômiale entre le numéro

de canal et l'énergie déposée dans le cristal. Le spectre obtenu est alors un ensemble de pics distribués en énergie se rajoutant à un fond.

L'énergie du pic correspond à l'énergie du photon incident, ce qui permet d'identifier le radioélément émetteur gamma. Les pics sont en réalité des gaussiennes dont la largeur à mi-hauteur varie avec l'énergie. Ceci étant dû à une déformation par le détecteur. La surface des pics est alors proportionnelle à l'activité. De manière à évaluer l'activité de l'échantillon, il faut pouvoir, pour chacun des pics localiser le centre du pic ainsi que les limites de celui-ci ; la surface du pic sera calculée entre ces limites. La recherche de pics et le calcul des surfaces peut se faire manuellement ou en utilisant les algorithmes utilisés par Genie2000.

L'étalonnage en énergie et l'étalonnage en résolution se font en une seule étape mais il existe plusieurs méthodes pour le réaliser :

- en visualisant le spectre à étalonner, il faut placer le curseur sur le sommet d'un pic.

Le logiciel calcul automatiquement le centre du pic et la résolution en canaux. Il faut alors rentrer la correspondance en énergie.

- sur le spectre, il faut placer des marqueurs qui entourent le pic servant à l'étalonnage.

Comme précédemment, le logiciel calcule le centre du pic et sa résolution en canaux et il faut entrer l'énergie correspondante du pic.

- il y a aussi la possibilité de faire une recherche automatique de pics. Le logiciel fournit une liste de pics avec leur centre et leur résolution exprimés en canaux. Il faut indiquer l'énergie de chacun des pics.

L'analyse de spectres, c'est-à-dire le calcul de la surface des pics ne peut être possible que si l'étalonnage en énergie et en résolution a été fait. Une fois ceci effectué, l'analyse sort une liste de pics avec leurs surfaces respectives. Il est possible au logiciel d'identifier le radioélément responsable d'un pic en comparant avec des tables et de calculer directement l'activité. Cela nécessite d'avoir réalisé un étalonnage en efficacité. Ce module n'étant pas très performant, par la suite nous ne l'avons pas utilisé (Courtine 2007).

Caractérisation des performances d'un détecteur

La qualité d'un détecteur gamma est liée à sa capacité d'une part à détecter des raies parfois peu intenses (critère d'efficacité) et d'autre part à les distinguer entre elles (critère de résolution). Cette section présente les différents critères généralement utilisés pour caractériser et comparer les performances des détecteurs.

Résolution en énergie

La résolution en énergie mesure la capacité d'un détecteur à séparer les raies dans le spectre. La résolution FWHM (full width at half maximum), δE (exprimée en keV), est la pleine largeur du pic mesurée à mi-hauteur (figure 13).

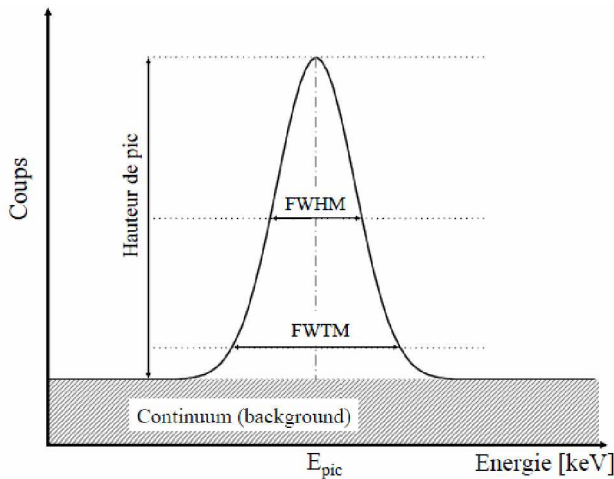


Figure 13. Définition de la résolution pour un pic parfaitement gaussien.

Dans le cas idéal, la forme du pic est parfaitement gaussienne, et la résolution est liée à l'écart-type $\sigma(E)$ de la distribution :

$$\delta E = \sqrt{8 \ln 2} \cdot \sigma_E = 2.35 \sigma_E \quad (22)$$

Notons qu'il est d'usage de définir une résolution relative R (exprimée en %) comme étant le rapport de la résolution FWHM à l'énergie du pic :

$$R(E) = \frac{\delta E}{E} \quad (23)$$

Tout comme l'efficacité, la résolution δE varie avec l'énergie des photons gamma. Que ce soit pour les scintillateurs ou les semi-conducteurs, la résolution est la somme de plusieurs contributions comme la fluctuation statistique, le bruit de l'électronique, la dispersion dans la collecte des charges (semi-conducteur) ou des photons (scintillateur), etc.

Afin de caractériser la forme du pic, il est également d'usage de spécifier la pleine largeur au dixième de la hauteur du pic, notée *FWTM* (full width at tenth maximum). Dans le cas d'un pic gaussien, la résolution *FWTM* est liée à l'écart-type $\sigma(E)$ et à la résolution *FWHM* par :

$$FWTM = \sqrt{8 \ln 10} \cdot \sigma(E) = 1.823 \delta E \quad (24)$$

Notons enfin que dans la pratique la forme des pics n'est pas toujours parfaitement gaussienne.

Dans ce cas, la mesure du rapport $\frac{FWHM}{FWTM}$ permet de juger de l'écart par rapport à la gaussienne parfaite (Pirard, 2006). Pour le Ge, les résolutions sont de l'ordre de 2 keV pour une énergie de 1,33 MeV (Raie d'une source de ^{60}Co) (Coulon 2010).

La résolution en énergie dépend du niveau d'intensité du signal (impulsion de courant qui résulte de la collecte des charges) par rapport au bruit (fluctuations décorréliées de l'interaction) du détecteur. Ainsi, l'amplitude du signal issue de l'interaction doit être élevée par rapport à la composante de bruit du signal. Le bruit provient principalement de la nature discrète de la production des porteurs de charge ou des photons de fluorescence et de l'écart-type statistique qui leur est associé. Dans le détecteur, une autre composante de bruit vient s'ajouter : le bruit d'origine électronique. En effet, le signal produit par les interactions est un flux aléatoire d'impulsions de très faible intensité (quelques pC).

Le signal est préamplifié de manière à rendre les impulsions produites par l'interaction des rayonnements avec le détecteur analysables par l'électronique de traitement du signal. Le bruit du signal préamplifié est la somme de différentes contributions de bruit produit principalement par les éléments actifs du premier étage amplificateur (perturbation électromagnétique, bruit thermique...) (Coulon 2010). Afin de supprimer le bruit électronique, il est important d'utiliser des composants électroniques de haute qualité, d'assurer la bonne compatibilité électromagnétique de l'ensemble (blindage), et de mettre en œuvre un débruitage performant du signal.

Efficacité de détection- Réponse en énergie

En général la géométrie des détecteurs ne permet pas de mesurer la totalité des rayonnements émis. En effet d'une part les détecteurs couvrent rarement un angle solide suffisant et d'autre part une partie des rayonnements traverse le détecteur sans interagir ou bien s'atténue partiellement avant de quitter la zone utile de détection. On a donc introduit la notion d'efficacité de détection qui traduit la capacité d'un dispositif à détecter un rayonnement donné d'une énergie donnée (Lyoussi, 2010). Deux types d'efficacités sont ainsi définis:

- L'efficacité absolue ou rendement d'un détecteur est le rapport des rayonnements mesurés sur les rayonnements émis par la source. L'efficacité est souvent exprimée en pourcentage du nombre de rayonnements incidents. Pour les compteurs de particules, on a :

$$\varepsilon_{abs} = \frac{\text{nombre d'impulsions comptés}}{\text{nombre de rayonnements issus de la source}} \quad (25)$$

- L'efficacité intrinsèque ne prend en compte que les rayonnements ayant traversé le détecteur.

$$\varepsilon_{int} = \frac{\text{nombre d'impulsions comptés}}{\text{nombre de rayonnements reçus par le détecteur}} \quad (26)$$

L'efficacité absolue est reliée à l'efficacité intrinsèque par la relation suivante :

$$\varepsilon_{abs} = \frac{\Omega}{4\pi} \varepsilon_{int} \quad (27)$$

Où Ω est l'angle solide défini par la surface du détecteur vue de la source (Figure 14).

$$\Omega = 2\pi \left(1 - \frac{d}{\sqrt{d^2 + a^2}} \right) \quad (28)$$

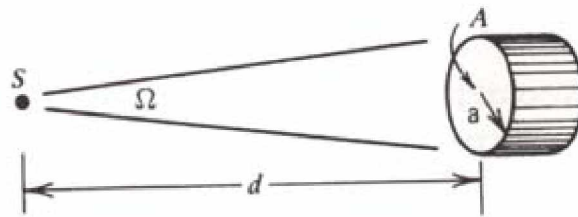


Figure 14. Notion élémentaire d'angle solide.

Le temps mort

L'électronique peut introduire des limitations sur le taux de comptage à cause des effets de temps mort et des problèmes liés à la collection de charge. Le temps mort correspond au temps minimal pour séparer deux événements qui vont être transformés en deux signaux électriques distincts. Si une particule interagit avec le cristal alors que le signal délivré par une interaction précédente est en cours d'acquisition, elle ne donne lieu à aucun comptage car l'entrée est bloquée électroniquement (Courtine 2007). Le temps mort est relié à une limitation de l'électronique : les opérations telles que la conversion de la charge collectée aux électrodes en un signal électrique, l'amplification et le filtrage de ce signal nécessitent un temps assez long pendant lequel le signal est traité, sachant qu'un seul signal peut être traité à la fois.

Les pertes de comptage liées au temps mort sont d'autant plus importantes que l'activité de la source est grande, car cela augmente la probabilité pour que deux gammas interagissent avec le cristal dans un laps de temps inférieur au temps mort. Le logiciel d'analyse de spectre

fournit donc deux informations : le temps « réel » qui correspond au temps total pendant lequel les mesures ont été effectuées et le temps « actif » qui prend en compte le temps mort (le temps actif étant plus petit que le temps réel).

Le bruit de fond

Le bruit de fond est le comptage ou l'enregistrement d'un spectre dans des conditions normales d'utilisation de la chaîne de mesure en l'absence de la source dont on veut mesurer le rayonnement on définit aussi comme étant le spectre enregistré à partir d'un détecteur, seul ou avec un conteneur vide ou contient de l'eau pure la connaissance de ce bruit de fond est utile pour améliorer la justesse des résultats de mesure de l'activité notamment dans le cas des traces. Les composantes du bruit de fond ont assentiment pour origine le rayonnement cosmique, la radioactivité des radionucléides présents dans les matériaux terrestres (familles d' U^{235} , U^{238} et Th^{232}) et la radioactivité artificielle qui est présentée dans les matériaux constituant le spectromètre ou dans son environnement immédiat. Après l'ajustement des pics, il est nécessaire de soustraire la contribution du bruit de fond dans le pic et d'en tenir compte dans le calcul d'incertitude globale (Lyoussi 2010).

Chapitre III

Fertilisation et Fertilisants

Les composants du sol

On peut faire une distinction entre les composants physiques et les composants chimiques de la terre. La terre est composée de trois éléments principaux : L'argile, limon (dite aussi l'humus), calcaire (dit aussi la chaux) et le sable. La composition idéale assure le bon équilibre nécessaire à la croissance des végétaux et une bonne structure. Elle est composée d'environ 60 % de sable, de 30% d'argile, de 5% de calcaire et de 5% d'humus. Le sol renferme également des éléments chimiques qui sont indispensables au développement des végétaux : l'azote, le phosphore et le potasse.

L'azote (N) sert à fabriquer les protéines et agit sur la photosynthèse qui permet le bon développement du feuillage et des pousses des plantes.

Le phosphore (P) aide à la germination, au bon développement racinaire et à la maturation des fruits.

Le potassium (K) permet à la plante d'être plus résistante face aux agressions comme le gel mais également les parasites et les maladies.

Tous ces composants ne sont pas indépendants mais doivent être équilibrés et réajustés régulièrement avec des apports d'engrais ou d'humus pour obtenir une bonne terre de culture.

Sol argileux

- Ce sol est facile à reconnaître car en pressant un peu de terre dans la main, elle se compacte de suite, on forme facilement une boule avec.
- De couleur assez grise il est assez doux au toucher.
- Cette terre retient toute l'eau et s'alourdit considérablement.
- Elle est très difficile à travailler du fait de sa lourdeur.
- De plus, en séchant la terre devient très dure.
- Les sols argileux sont généralement riches et fertiles car ils retiennent l'eau et les nutriments ou les oligo-éléments. Ils absorbent bien et fixent les engrais.

Dans les cultures agricoles, trois substances essentielles permettent un développement dans les bonnes conditions. Il s'agit de l'azote, du phosphore et de la potasse. Ces trois principales substances sont généralement assemblées mais les combinaisons dépendent de plusieurs facteurs. Il n'est donc pas possible de donner des formules standard de fertilisation minérale des sols dans la mesure où elles dépendent de la nature des sols.

Définition d'engrais

Les engrais sont des substances, le plus souvent des mélanges d'éléments minéraux, destinées à apporter aux plantes des compléments d'éléments nutritifs de façon à améliorer leur croissance et augmenter le rendement et la qualité des cultures. L'action consistant à apporter un engrais s'appelle la fertilisation. Les engrais font partie des produits fertilisants, avec les amendements. La fertilisation se pratique en agriculture et lors des activités de jardinage. Les engrais furent utilisés dès l'Antiquité, où l'on ajoutait au sol, de façon empirique, les phosphates des os (calcinés ou non), l'azote des fumures animales et humaines, le potassium des cendres.

L'engrais phosphaté

En effet, l'agriculture a besoin des terres fertiles pour garantir le maintien des conditions optimales de productivité nécessaire pour répondre aux besoins alimentaires d'une population mondiale en constante augmentation. Les engrais sont par conséquent nécessaires pour créer les conditions d'une agriculture efficiente.

Deux principaux types d'engrais sont utilisés dans l'agriculture : les engrais organiques et les engrais minéraux. Un troisième groupe est constitué par les engrais organominéraux, combinaison des deux premiers. Les engrais organiques sont d'origine animale ou végétale. Les formes chimiques des engrais sont apparues avec l'industrie de la chimie, du charbon et du pétrole. Les engrais minéraux ont fait leur apparition avec notamment les gisements naturels de phosphate et de potasse ainsi que la fabrication d'engrais chimiques.

Les engrais sont produits, commercialisés et utilisés dans le monde entier. Dans l'agriculture, les éléments nutritifs des sols qui permettent une amélioration de la productivité et qui sont largement utilisés sont les engrais minéraux dont les principaux sont les engrais azotés, phosphatés et potassiques. Des éléments secondaires ou oligo-éléments contribuent à l'enrichissement des sols. Il s'agit notamment du manganèse, du fer, du bore et du zinc.

Différents minerais contenant l'uranium

l'autunite ou la calco-uranite	$\text{CaO}(\text{UO}_2)_2(\text{PO}_4)_2 \cdot 10-12\text{H}_2\text{O}$
La brannérite	$(\text{U}, \text{Ca}, \text{Y}, \text{Ce})(\text{Ti}, \text{Fe})_2\text{O}_6$
La carnotite	$\text{K}_2(\text{UO}_2)_2\text{V}_2\text{O}_8 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$
La coffinite	$\text{U}(\text{SiO}_4)_{1-x}(\text{OH})_{4x}$
La curite	$\text{Pb}_2\text{U}_5\text{O}_{17} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$
La joliotite	$(\text{UO}_2)\text{CO}_3 \cdot n\text{H}_2\text{O}$
La kasolite	$\text{Pb}(\text{UO}_2)\text{SiO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$
la pechblende ou l'uraninite	UO_2
La thorite	$(\text{Th}, \text{U})\text{SiO}_4$
La thuyamunite	$\text{CaO}(\text{UO}_2)_2 \cdot \text{V}_2\text{O}_8 \cdot 5-8\text{H}_2\text{O}$
l'uranophane	$\text{CaO}(\text{UO}_2)_2[\text{SiO}_3(\text{OH})_2]_2 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$

Tableau 4. Différents minerais comportant l'uranium (Poty et Roux 1992).

Les gisements de phosphates contenant l'uranium

Les phosphates naturels sédimentaires tiennent leur source des dépôts des excréments d'espèces marines sur fond océanique, généralement formés en zone côtière peu profonde. Les gisements exploités dans plusieurs parties du monde, se présentent avec des propriétés chimiques et physiques très contrastées, et les phosphates marocains sont de loin les plus importants aussi bien en quantité qu'en qualité (Slansky 1980).

La formule brute d'un groupement phosphate est PO_4^{-3} , il se compose d'un atome de phosphore relié à 4 atomes d'oxygène, cette molécule étant ensuite reliée à un radical.

Les minerais de phosphates sont donc des roches concentrées en sels de phosphates.

Ils peuvent se former par précipitation d'ions lors de la diagénèse d'une roche, comme l'apatite, ou être issus d'une forme biologique. En effet, les ossements des êtres vivants constituent une source de phosphore importante quand ils se décomposent. De même que le guano des oiseaux et des chauves-souris, qui est utilisé tel quel comme engrais depuis des siècles dans plusieurs parties du monde (Baudoin et Petriz 2010).

Le second minéral phosphate est la thuyaminite qui contient une phase d'uranium jaune. L'uranium a quatre valences possibles (+III à +VI). Les valences IV et VI étant les plus répandues dans les minerais. L'uranium dont la valence VI a une couleur jaune.

APATITES

Phosphates de chaux naturels, $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3(\text{OH},\text{F},\text{Cl})$, les apatites sont des minéraux accessoires des roches éruptives et métamorphiques, fréquents en outre dans les gîtes phosphatés sédimentaires. En effet, on peut confondre une apatite avec des pierres précieuses telles que la tourmaline, l'aigue-marine ou l'améthyste. Elle se présente généralement sous forme de prismes hexagonaux de taille et couleurs variables : jaune, bleu-vert, violet, rose ou beige (voir photos des apatites en annexe). La fluorapatite, est l'espèce la plus commune, tandis que le phosphore cède parfois la place à l'arsenic.

Les phosphates de calcium, en particulier de type apatitique qui forment la quasi-totalité des minerais phosphatés, ont des propriétés physico-chimiques et texturales très variées. Ils sont capables d'établir des liaisons avec des molécules organiques de différentes tailles.

Les phosphates naturels comportent une variabilité texturale et structurale suivant leurs origines. Le phosphore se trouve combiné sous différentes espèces minéralogiques dont la plus répandue, est la fluorapatite carbonatée cristallisée dans le système hexagonal, de formule chimique $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{F}$. Cette apatite se trouve plus ou moins substituée associée à de multiples composés minéraux et organiques qui forment la gangue, notamment, le chlore, les radicaux OH ou CO_3 peuvent se substituer au fluor.

La gangue peut être soit extérieure aux grains phosphatés (éxogangue), soit incluse dans les grains (endogangue). La taille, la nature, et la quantité de la gangue influencent fortement les propriétés de l'apatite phosphatée.

Parmi tous les phosphates, les apatites sont les plus abondantes. Le composé le plus fréquent dans la nature est la fluorapatite avec ses variétés carbonatées et hydroxylées, Cette apatite se trouve plus ou moins substituée avec d'autres éléments. Les substitutions les plus importantes dans la plupart des gisements sédimentaires sont :

- Û Substitution des ions fluorures par les ions chlorures ou hydroxyde pour former la chlorapatite et l'hydroxyapatite.
- Û Substitution des ions orthophosphates PO_4^{3-} par les carbonates CO_3^{2-} pour donner une fluorapatite carbonatée (francolite).
- Û Substitution de Ca^{2+} par Na^+ et Mg^{2+} .

Les hydroxyapatites carbonatées sont d'un intérêt primordial pour les biologistes, car ces composés sont les principaux constituants des os et des dents de mammifères.

Structure des apatites

Les apatites répondent à la formule générale $Me_{10} (RO_4)_6 X_2$, où Me est un métal bivalent ($Ca^{2+}, Ba^{2+}, Ln^{2+} \dots$), RO_4 un anion trivalent ($PO_4^{3-}, AsO_4^{3-}, MnO_4^{3-} \dots$), et X est un anion monovalent (F, Cl, OH⁻). Ces matériaux constituent une famille cristallographique de composés solides isomorphes qui cristallisent dans le système hexagonal. La stabilité du réseau apatitique est assurée par l'assemblage des ions métalliques et les ions RO_4^{3-} indépendamment des ions X⁻.

Les minéraux les plus répandus sont :

- Û Les carbonates sous deux formes principales : la calcite $CaCO_3$ et la dolomite $Ca,Mg (CO_3)_2$.
- Û Les minéraux siliceux sous différentes formes : quartz (SiO_2) et divers silicates d'alumine de fer et de magnésium.
- Û Les sulfates représentés par le gypse $CaSO_3$ et l'anhydrite $CaSO_4$.
- Û Le fer sous forme oxyde (Fe_2O_3) ou hydroxyde.
- Û Les matières carbonées généralement en faible abondance 0.1 % à 0.6 % résultant de la transformation des restes d'organismes vivant et de débris organiques divers enfus au moment de la sédimentation phosphatée.

L'autunite est une espèce minérale d'apatite composée de phosphate d'uranium et de calcium hydraté de formule $Ca(UO_2)_2(PO_4)_2 \cdot 10-12H_2O$ pouvant contenir des traces de Ba et Mg (voir photos en annexe).

La monazite est un autre minéral de phosphate de formule $(Ce, La, Th)PO_4$.

La structure de la monazite consiste en tétraèdres PO_4 isolés avec des éléments des terres rares en coordination neuf. Toutes les terres rares peuvent entrer dans la structure de la monazite. À cause de sa capacité à accepter l'uranium et le thorium, la monazite est le minéral le plus radioactif après l'uraninite, la thorianite et la thorite ; c'est d'ailleurs le minéral radioactif le plus commun et, dans plusieurs roches, le principal minéral hôte de l'uranium et du thorium.

BRAZILIANITE

Phosphate hydroxylé d'aluminium et de sodium, la brazilianite, de couleur jaune à jaune verdâtre, se présente en cristaux prismatiques centimétriques ainsi qu'en agrégats divergents souvent associés à la muscovite (un mica blanc). De formule : $NaAl_3(PO_4)_2(OH)_4$.

La brazilianite tire son nom du Brésil, où elle a été découverte pour la première fois en 1945 près de Divino das Lajanjeiras (Minas Gerais). Elle a été depuis signalée aux États-Unis (New Hampshire) et dans le sud de l'Autriche, près de Spittal. Les gisements de la brazilianite sont associés à l'hydrothermalisme des pegmatites granitiques ; le minéral y apparaît en phénocristaux de plusieurs centimètres, pouvant atteindre, pour les plus beaux spécimens, vingt centimètres et peser plus d'un kilogramme.

TORBERNITE

Phosphate hydraté d'uranium, de formule chimique : $\text{CuO}(\text{UO})_2(\text{PO}_4)_2, 12 \text{H}_2\text{O}$.

À l'analyse, la torbernite (ou chalcolite) apparaît composée de 7,7 % de CuO, de 57,5 % de UO_3 , de 14,5 % de P_2O_5 et de 20,3 % de H_2O . L'arsenic est parfois présent comme élément accessoire isomorphe ; il en est de même du phosphore. La teneur en eau varie avec la température ambiante ; à 45 °C, le minéral perd quatre molécules d'eau et se transforme en métatorbernite. La torbernite appartient au groupe de l'uranite, vaste ensemble de phosphates basiques hydratés, d'arséniates et de vanadates correspondant aux sels de métaux bivalents (Cu^{++} , Ca^{++} , Mg^{++} , Fe^{++} et Mn^{++}) avec l'ion U^{6+} .

TRIPLITE

Minéral de couleur brun sombre (rose saumon dans les variétés riches en manganèse) devenant noir de poix par altération, la triplite doit son nom à la présence de trois clivages (composé de trois parties). Elle a pour formule chimique : $\text{P}_2\text{O}_5, 3 \text{RO}, \text{R}(\text{F}, \text{OH})_2$, où R = Fe, Mn. Le fer Fe et le manganèse Mn se substituent mutuellement, (OH) peut également se substituer au fluor F mais en faibles quantités.

La triplite se rencontre dans les filons pegmatitiques riches en phosphate, où elle peut être associée au quartz, au béryl, à l'apatite, à la fluorine...

TURQUOISE

Phosphate hydraté de cuivre et d'aluminium, la turquoise se présente généralement en nodules bleu ciel, souvent réniformes, où s'expriment des veines ocre (de couleur jaune-brun ou jaune-rouge.), brunes ou noires de limonite ou de jaspe.

Formule : $\text{CuAl}_6(\text{PO}_4)_4(\text{OH})_8, 4\text{H}_2\text{O}$; système : triclinique (les cristaux sont petits et rares). Le terme turquoise provient de l'ancien français « turquois » (turc) car c'est de l'empire Ottoman que provenaient jadis les belles pièces vers l'Occident.

La turquoise est un minéral secondaire, formé sous climat aride, au sein de filons de roches magmatiques riches en alumine. De superbes turquoises proviennent d'Iran, du Tibet et des États-Unis où des nodules de plusieurs dizaines de kilogrammes ont été extraits de Battle Mountain au Nevada. La turquoise a toujours été utilisée comme gemme de valeur pour les bijoux ou les objets d'art.

XENOTIME

Essentiellement constitué par du phosphate d'yttrium, de formule (YPO_4) , le xénotime peut renfermer parfois de l'erbium et d'autres lanthanides (cérium, lanthane, scandium...) qui se substituent à l'yttrium dans la structure cristalline. Le thorium, l'uranium, le zirconium, le béryllium et le calcium peuvent se substituer à l'yttrium, mais dans une moindre proportion ; le xénotime constitue d'ailleurs une série isotopique et isomorphe avec le zircon et la thorite, et l'on trouve dans la nature des cristaux mixtes de ces trois minéraux : l'oyamalite est le mélange isomorphe du zircon et du xénotime, de formule $(Zr, \dots)(Si, P)O_4$ et qui contient environ 18 % de lanthanides ; l'auerlite $(Th, U \dots)(Si, P)O_4$, cristallisant comme la précédente dans le système quadratique, est le produit du mélange de la thorite et du xénotime.

Métaux lourds dans le phosphate naturel

Tous les phosphates naturels contiennent des éléments dangereux comprenant des métaux lourds, par exemple le cadmium (Cd), le chrome (Cr), le mercure (Hg) et le plomb (Pb), et des éléments radioactifs, par exemple l'uranium (U), qui sont considérés comme toxiques pour la santé humaine et animale. Les teneurs de ces éléments dangereux changent considérablement parmi les sources de phosphate naturel et même dans le même gisement. Le tableau ci dessous montre les résultats d'une analyse chimique des éléments potentiellement dangereux dans certains échantillons de phosphate naturel sédimentaires. Parmi les métaux lourds dangereux dans les engrais phosphatés, l'uranium est probablement l'élément le plus recherché, en raison de la toxicité potentiellement élevée pour la santé humaine des aliments qui proviennent de cultures fertilisées avec des engrais phosphatés contenant une quantité significative d'uranium (FAO 2004).

Analyse chimique des éléments potentiellement dangereux dans des phosphates naturels sédimentaires											
Pays	Dépôt	Réactivité	P ₂ O ₅ (%)	As	Cd	Cr	Pb	Se	Hg	U	V
				(mg/kg)						(µg/kg)	(mg/kg)
Algérie	Djebel Onk	Elevée	29,3	6	13	174	3	3	61	25	41
Burkina Faso	Kodjari	Faible	25,4	6	< 2	29	< 2	2	90	84	63
Chine	Kaiyang	Faible	35,9	9	< 2	18	6	2	209	31	8
Etats-Unis	Floride Centrale	Moyenne	31,0	6	6	37	9	3	371	59	63
Etats-Unis	Caroline du Nord	Elevée	29,9	13	33	129	3	5	146	41	19
Inde	Mussoorie	Faible	25,0	79	8	56	25	5	1 672	26	117
Jordanie	El Hassa	Moyenne	31,7	5	4	127	2	3	48	54	81
Mali	Tilemsi	Moyenne	28,8	11	8	23	20	5	20	123	52
Maroc	Khouribga	Moyenne	33,4	13	3	188	2	4	566	82	106
Niger	Parc W	Faible	33,5	4	< 2	49	8	< 2	99	65	6
Pérou	Sechura	Elevée	29,3	30	11	128	8	5	118	47	54
République Arabe Syrienne	Khneifiss	Moyenne	31,9	4	3	105	3	5	28	75	140
République unie de Tanzanie	Minjingu	Elevée	28,6	8	1	16	2	3	40	390	42
Sénégal	Taiba	Faible	36,9	4	87	140	2	5	270	64	237
Togo	Hahotoe	Faible	36,5	14	48	101	8	5	129	77	60
Tunisie	Gafsa	Elevée	29,2	5	34	144	4	9	144	12	27
Venezuela	Riecito	Faible	27,9	4	4	33	< 2	2	60	51	32

Tableau 5. Analyse chimique des éléments potentiellement dangereux dans des phosphates naturels sédimentaires.

Procédés de fabrication des différents engrais phosphatés

Les engrais sont composés de différents éléments minéraux destinés à apporter aux plantes des compléments nutritifs, en plus de ce qu'elles trouvent dans la terre, en vue d'améliorer leur croissance et le rendement des cultures. Ils contiennent généralement au moins de l'azote, du phosphore et du potassium. C'est là qu'interviennent les phosphates, ils sont une source de phosphore.

Cet élément chimique rend les plantes plus résistantes, notamment à la sécheresse, et participe au développement de leurs racines ainsi qu'à la maturation des fruits. Nous pouvons donc classer les engrais en azotés, phosphatés ou potassiques. Ce sont seulement les phosphatés qui nous intéressent.

Fabrication des engrais phosphatés

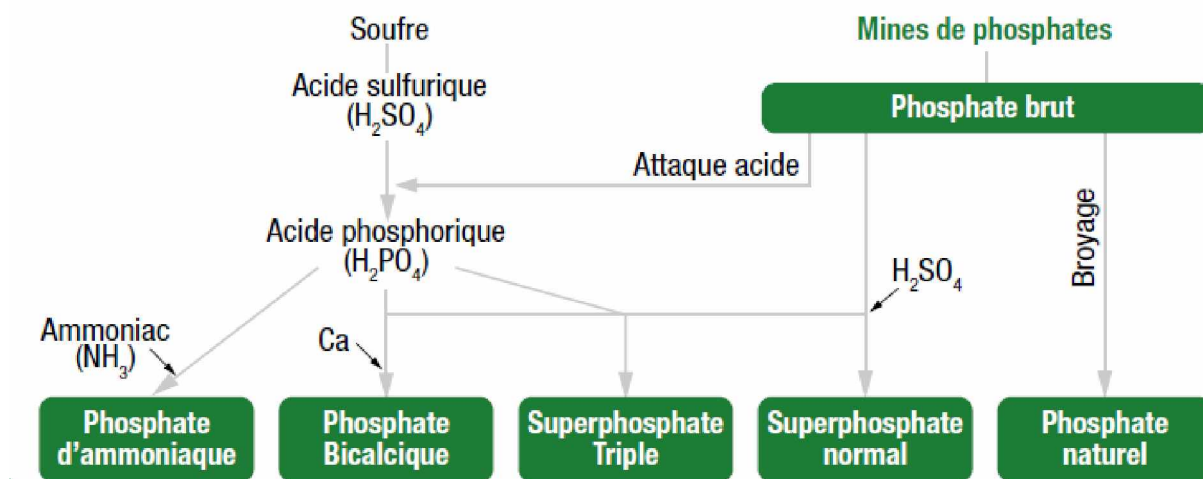


Figure 15. Etapes de fabrication d'engrais phosphatés à partir de phosphate naturel.

L'acide phosphorique est ainsi à la base de la majorité des produits phosphatés. Si l'essentiel de l'acide phosphorique est destiné à l'agriculture (Baudoin et Petriz 2010), il est également destiné à d'autres industries comme l'alimentation animale, l'industrie alimentaire, l'industrie des détergents.

Le procédé de fabrication de l'acide phosphorique utilisé est par voie humide, dans lequel l'acide est obtenu par attaque directe du phosphate minéral par un acide fort (acide sulfurique). Il est largement utilisé dans le monde car il présente l'avantage de produire un acide ayant un faible prix de revient.

Les trois principales phases comprennent :

Le broyage : le broyage du phosphate brut a pour but d'augmenter la surface d'attaque du minerai par l'acide sulfurique.

L'attaque filtration : Le phosphate broyé est attaqué par l'acide sulfurique concentré à 98,5% et l'acide phosphorique moyen (18 à 22% de P_2O_5) en milieux aqueux. Le mélange donne une bouillie. La filtration de cette bouillie consiste à séparer l'acide phosphorique 29% P_2O_5 du phosphogypse via un filtre rotatif. Le produit est ensuite stocké dans des bacs de décantation.

La concentration : La fonction de la concentration de l'acide phosphorique est de permettre l'évaporation de l'eau pour obtenir un acide tirant 54% de P_2O_5 .

Types d'engrais

Le principe de fabrication des engrais est basé sur la réaction entre l'acide phosphorique et l'ammoniac (pour les DAP, ASP, MAP et NPK) et sur l'attaque du phosphate par de l'acide phosphorique (pour le TSP).

Pour les engrais DAP, MAP et ASP, la méthode consiste d'abord à neutraliser l'acide phosphorique par l'ammoniac en présence de l'acide sulfurique. Il se forme alors une bouillie qui sera expédiée vers un granulateur. Le produit granulé ainsi récupéré est introduit dans un sécheur chauffé par les gaz provenant d'une chambre à combustion.

À la sortie du sécheur, le produit subit alors une sélection par tamisage à travers un crible. Le produit marchand ainsi obtenu est refroidi, puis enrobé par le fuel afin d'éviter les prises en masse au moment du stockage.

Dans le cas du NPK, le procédé est identique sauf que l'ammoniation est complétée par l'ajout de potasse dans le granulateur.

La fabrication du TSP est basée sur la réaction du phosphate broyé avec l'acide phosphorique à 42% P_2O_5 . L'attaque est ensuite complétée par un séchage progressif de la bouillie. Après granulation, le produit subit une sélection dans des tamis vibrants, des broyeurs et des concasseurs.

Le Diammonium Phosphate (DAP)

Seulement 1,5 % du phosphate naturel est utilisé en épandage direct. La majorité des produits phosphatés fabriqués sont des mélanges avec des produits azotés tels que le Diammonium Phosphate (DAP), le Mono ammonium Phosphate (MAP) et le Nitrophosphate. Le DAP est le principal produit, représentant près de 30% des produits phosphatés. Il est issu du mélange d'acide phosphorique et d'ammoniac. Constitué de 18% d'azote ammoniacal et 46% de P_2O_5 , il se présente sous forme granulée et offre l'avantage d'être très concentré en éléments fertilisants.

La fertilisation est effectuée sous la forme d'un engrais composé NPK ou PK. En effet, les éléments phosphate et potassium sont peu épandus directement sur le sol (Gachon 1988). Il existe actuellement deux procédés industriels pour les engrais composés :

- Ù Les engrais composés complexes sont obtenus à partir de la granulation des différents éléments azote, phosphate et potassium préalablement broyés, mélangés et attaqués par réaction chimique. Leur principale caractéristique est de proposer l'ensemble des éléments souhaités au sein d'un seul granulé, c'est-à-dire que chaque grain d'engrais

contiendra tous les éléments. C'est un procédé industriel complexe et consommateur d'énergie. Son coût de fabrication est élevé.

Ù Les engrais composés de mélange sont obtenus à partir du mélange des différents éléments simples préalablement mis sous la forme granulée. Contrairement aux engrais complexes, chaque granulé est un élément simple, c'est-à-dire que chaque grain d'engrais ne contient qu'un élément. La proportion d'élément souhaitée est obtenue sur l'ensemble de la quantité épandue. Compte tenu de l'hétérogénéité des différents produits mélangés, il peut présenter des problèmes de ségrégation lors de l'épandage. C'est un procédé industriel simple avec un coût de fabrication faible.

L'uranium suit le processus de fabrication de l'engrais phosphaté

Le phosphate est largement utilisé, d'abord comme une source de phosphore pour les engrais et d'autre part pour la fabrication de l'acide phosphorique et de gypse. Les minerais contiennent généralement environ 1500 Bq / kg d'uranium et de radium, même si certains phosphates contiennent jusqu'à 20000 Bq / kg de U_3O_8 (UNSCEAR 2008). En général, les minerais de phosphate d'origine sédimentaire ont des concentrations plus élevées de nucléides de la famille d'uranium. les minéraux magmatiques, comme celles de Kola (Russie) et Phalaborwa (Afrique du Sud), présente des concentrations plus faibles de nucléides de la famille de l'uranium et des concentrations plus élevées des nucléides de la famille du thorium, même si l'activité totale est inférieure à celle des minéraux sédimentaires. Dans 90% des cas, le minerai est traité par l'acide sulfurique. Les engrais deviennent un peu enrichi en uranium (jusqu'à 150% par rapport au minerai), tandis que 80% de la ^{226}Ra , 30% du ^{232}Th et 5% de l'uranium sont laissés dans la phosphogypsum. Le traitement des roches phosphoriques peut générer des radiations émises par l' ^{238}U et le ^{226}Ra lorsqu'elles sont rejetées dans l'environnement. L'utilisation de fertilisants phosphatés dans l'agriculture et de gypse dans les matériaux de construction est une autre source d'exposition possible du public.

En suivant le processus de fabrication des différents types d'engrais phosphatés, on constate que l'uranium a la disponibilité à former des complexes avec l'acide sulfurique ainsi qu'avec les phosphates. L'acide sulfurique attaque les principaux métaux usuels en donnant un sulfate métallique par libération d'hydrogène. L'uranium a l'aptitude de former des complexes sulfatés tels : UO_2SO_4 ; $UO_2(SO_4)_2^{2-}$ et $UO_2(SO_4)_3^{4-}$.

L'ion uranyle forme aussi différents complexes avec les phosphates en fonction du pH :

$UO_2H_2PO_4^+$, $UO_2HPO_4^{aq}$ et $UO_2PO_4^-$ (FAO, 2004). Il existe d'autres espèces de phosphate

d'uranyle mais ces trois formes prédominent. Les complexes de phosphates d'uranyle sont cependant très peu solubles et précipitent rapidement. La présence de phosphates dans un système contenant de l'U(VI) provoque surtout la formation de précipités à pH supérieur à 6 où la concentration en uranium et en phosphates varient. Lors de l'attaque sulfurique du phosphate, l'uranium est libéré et passe en solution dans l'acide phosphorique duquel il peut être extrait à l'aide de solvants organiques.

Impact de la pollution des sols sur la santé

Évaluer la pollution des sols et en mesurer son impact sur la santé humaine peut sembler difficile à l'heure actuelle tant les connaissances sont fragmentaires, notamment :

- par l'absence d'inventaires des sources de contamination et des contaminants impliqués ;
- par le manque de données sur les pollutions historiques et leur impact sur la qualité des sols ;
- par des connaissances encore très partielles sur le comportement des contaminants dans le sol et sur les mécanismes qui régissent leur accumulation, diffusion et transfert ;
- par le faible nombre d'études épidémiologiques et toxicologiques des effets des contaminants sur l'homme.

Les sols ont subi et subissent encore une pollution importante en Algérie. Considérée sur le long terme, cette pollution risque d'avoir une incidence sur la santé des populations.

Une meilleure connaissance des sites pollués ou supposés tels, de la nature et des quantités de contaminants impliqués sont également nécessaires à une évaluation préliminaire de la contamination des sols et des risques sanitaires qui en découlent.

Redistribution de l'uranium dans les écosystèmes en liaison avec l'action anthropique

L'origine exclusivement naturelle de l'enrichissement des sols, sédiments, eaux de surface est en liaison avec 4 usages principaux :

- Cycle du combustible nucléaire (de la mine au stockage de déchets)
- Utilisation militaire
- Combustion du charbon
- Usage agricole d'engrais phosphatés issus de phosphates naturels particulièrement riches en uranium.

Chapitre IV

RESULTATS ET DICUSSION

Échantillonnage et préparation des échantillons

Afin de mesurer la radioactivité naturelle, des engrais phosphatés et des échantillons de sol avant et après la fertilisation ont été prises de la région de Sétif en Algérie.

Dans cette région, il existe plusieurs espèces de légumes verts qui sont plantés comme pommes de terre, poivrons, tomates, choux-fleurs et de grandes surfaces de blé. La plupart des zones cultivées considérées comme la principale source de nourriture pour les citoyens qui vivent à Sétif. Pour un aperçu complet de la radioactivité naturelle, l'eau d'irrigation a été mesurée aussi (Baykara et Dogru, 2006).

Le sol étudié est un sol argileux contient 60% d'argile, 24% de limon et 16% de sable. Les textures du sol pour tous les échantillons étaient très similaires car elles sont prises de la même région. Le sol est légèrement alcalin (pH 8).

La distance entre chaque site était d'environ entre 2 à 5 km. Trois sous-échantillons ont été prélevés de chacun des 12 sites où la surface de chaque site était de 1 m². Les sous-échantillons ont été recueillis par un échantillonneur qui récolte des sous-échantillons de 15 cm de diamètre (la surface de chaque sous-échantillon est de 177 cm²) et 25 cm de profondeur. Les sous-échantillons collectés ont été d'environ 2 kg.

Chaque fois, un sous-échantillon doit être prélevé sur chaque site, puis mélangé jusqu'à trois échantillons composites ont été obtenus pour faire l'étude de leur radioactivité. Le site a été fertilisé avec des engrais phosphatés qui ont été utilisés depuis plus de six ans en quantités d'environ 800-850 kg par hectare.

Six ans après la fertilisation, d'autres échantillons ont été prélevés de la même manière que précédemment et mélangés pour obtenir leurs échantillons composites et faire l'étude de radioactivité.

Pour les engrais, trois échantillons ont été prélevés sur chaque type d'engrais (NPK et NPKs). Après avoir retiré les pierres et les matières inorganiques, les échantillons ont été séchés dans un four à environ 100 ° C puis broyé et tamisé à travers un tamis à mailles de 0,5 mm. Les échantillons tamisés ont été mis dans des beakers Marinelli de 500 ml. Ces derniers ont été scellés et laissés pendant au moins 4 semaines (> 7 demi-vies de ²²²Rn et du ²²⁰Rn) avant le comptage par spectrométrie gamma afin d'assurer que les produits de filiation de ²²⁶Ra, jusqu'à ²¹⁰Pb, et de ²²⁸Th au ²⁰⁸Pb, atteignent l'équilibre avec leurs radionucléides parents respectifs. Cette étape est nécessaire pour veiller à ce que le radon est confiné dans le volume et les descendants resteront également dans l'échantillon.

La masse moyenne de chaque échantillon était de 500 g pour les engrais et les sols. Le volume de l'échantillon d'eau était de 450 ml.

Procédure expérimentale

Le spectromètre de rayons gamma utilisé est un détecteur HPGe avec un analyseur multicanaux à 8192 canaux. Le détecteur HPGe est de type p avec les caractéristiques suivantes: résolution (FWHM) à 122 keV du ^{57}Co est 0,825 keV et à 1332 keV du ^{60}Co , la résolution est de 1,8 keV, l'efficacité relative est de 10%.

Le détecteur est placé dans un château en plomb pour protéger la station de mesure contre la radioactivité ambiante.

Les échantillons sont ensuite placés respectivement dans le détecteur pour une durée de 30 heures (soit 108000 secondes) chacun. Le détecteur, qui est refroidi par un Dewar à la température de l'azote liquide (77°K), est liée directement au préamplificateur puis aux autres composantes de la chaîne de mesure.

Le sol inactif et l'eau stérilisée ont été utilisés pour estimer le taux du bruit de fond. Le temps de collection était de 194400 s (54 heures).

Comme résultat, on a un spectre donnant le nombre de coups enregistrés par seconde en fonction de l'énergie des gammas émis par l'échantillon. Les spectres ont été évalués par le logiciel Genie 2k (Canberra). Le calcul des concentrations d'activité des différents radioéléments présents dans les échantillons a été fait manuellement avec l'utilisation d'un tableur (Microsoft Excel).

Après la mesure et la soustraction du bruit de fond, les concentrations d'activité ont été estimées.

a) La concentration du ^{226}Ra a été calculée comme la moyenne pondérée de l'activité déterminée en utilisant :

- ü les raies gamma 295.1 (19.2%) et 351.9 (37,1%) keV du ^{214}Pb ;
- ü les raies spécifiques du ^{214}Bi : 609.3 (46.1%), 1120.3 (15%) keV et 1764.5 keV (15.4%) du (3,59%) ;
- ü Et la raie caractéristique 186.2 keV du ^{226}Ra . Le comptage enregistré sous le pic 186keV est la superposition des émissions du ^{226}Ra et ^{235}U . Par conséquent, le taux de comptage sous le pic 186 keV a été traité comme la somme. Papachristodoulou et al. propose dans son article publié en 2003 une méthode pour séparer les concentrations du ^{226}Ra et ^{235}U situé sous le même pic 186 keV.

b) La concentration du ^{232}Th a été calculée comme la moyenne pondérée de l'activité déterminée en utilisant les raies spécifiques de:

Û L' ^{228}Ac : 338,4 (12%), 911,2 (29%), 964,6 (5,05%) et 969,0 keV (17%) ;

Û Le ^{212}Pb : 238,6 keV (44,6%) ;

Û Et le ^{208}Tl : 583,2 (84,4%) et 860,6 keV (12,4%).

c) Les concentrations du ^{40}K et du ^{137}Cs ont été déterminés en utilisant directement les raies spécifiques respectives 1460,8 (10,7%) et 661,7 (85,12%) keV.

Calibration de la chaîne de mesure

L'étalonnage du détecteur est fait en utilisant un échantillon de sol imbibé avec une solution radioactive d' ^{152}Eu et de ^{133}Ba (Lavi et Alfassi 2005). L'étalonnage est réalisé par de nombreuses sources « étalon » adaptées à la géométrie de mesure de l'échantillon (Marinelli Beaker de 500 ml). Les étalons multi-gamma servent à l'étalonnage en énergie et en efficacité des détecteurs utilisés pour les mesures de faible niveau d'activité. Ils sont conçus essentiellement pour l'étalonnage des détecteurs gamma (GeLi, Ge hyper pur, etc.) dans le domaine des mesures environnementales. Ils couvrent une gamme d'énergies de 30 à 400 KeV pour le Baryum 133 et de 122 à 1 408 KeV pour l'Europium 152.

Les différents pics caractéristiques des sources étalons utilisées :

^{133}Ba 30,8 - 35,1 - 53,2 - 80,9 - 276,4 - 302,9 - 356,0 - 383,9 keV

^{152}Eu 121,8 - 244,7 - 344,3 - 411,1 - 444,0 - 867,4 - 963,5 - 964,1 - 1085,8 - 1089,7
1112,1 - 1212,9 - 1299,1 - 1408,0 keV

Calibration en énergie

L'étalonnage en énergie (analyse qualitative) consiste à faire correspondre à chaque canal de l'analyseur multicanaux une énergie correspondante afin d'avoir une fonction entre l'énergie et le numéro du canal. Il permet d'identifier les radionucléides qui existent dans l'échantillon à analyser.

En utilisant les données des sources étalons, la droite de calibration obtenue est :

$$\text{Energie} = A \times \text{Canal} + B \Rightarrow \begin{cases} A = 0.323 \text{ keV / Canal} \\ B = 1.718 \text{ keV} \end{cases} \Rightarrow \text{Energie} = 0.323 \times \text{Canal} + 1.718$$

Calibration en efficacité

Pour établir la relation entre l'efficacité et l'énergie, il est nécessaire d'acquérir un spectre calibré en énergie des sources radioactives standards connues, pendant un temps suffisamment long pour obtenir des pics avec une petite incertitude. Deux sources radioactives connues l'Europium152 et Baryum 133, avec des pics isolés ont été utilisées. L'acquisition des données, pendant un temps de comptage suffisant égale à 3600 secondes, a été effectuée. Une fois l'acquisition terminée, on détermine le nombre net des coups sur chaque pic de la source, caractérisé par une énergie spécifique, en utilisant le logiciel Génie2000, les résultats sont illustrés dans la courbe d'étalonnage ci-dessous :

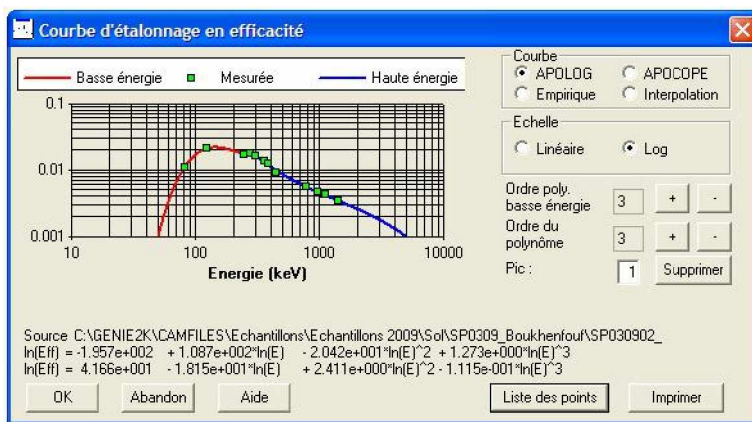


Figure 16. Courbe d'étalonnage en efficacité.

L'ACTIVITE MINIMALE DETECTABLE

L'activité minimale détectable (MDA) des radionucléides ^{40}K , ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{137}Cs , pour tous les échantillons, est donnée dans le tableau suivant (les détails sont dans la partie annexe).

L'activité minimale détectable (MDA) pour le ^{40}K , ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{137}Cs dans les sols ont été déterminées et sont donnés dans le tableau 6. Le MDA dans les eaux souterraines pour le ^{40}K radionucléide est de 7,35 Bq / l.

Nuclide	MDA (Bq / kg)
^{40}K	25
^{226}Ra	11.4
^{232}Th	3.6
^{137}Cs	1.4

Tableau 6. Valeurs des activités minimales détectables.

RESULTATS ET DISCUSSION

MESURE DES ACTIVITES SPECIFIQUES DES ECHANTILLONS

La bibliothèque du Génie 2000 contient des radioéléments et les énergies de leurs gammas correspondants. En s'aidant de cette option, on peut identifier les différents radioéléments qui existent dans les échantillons. Le résultat de cette analyse a donné le tableau suivant :

I. RADIONUCLIDES IDENTIFIES DANS LES ECHANTILLONS

La méthode permet la détermination de l'activité massique (ou volumique) des radioéléments émetteurs gamma dans des échantillons par comptage des photons donnant naissance à un phénomène photoélectrique. Seuls les radioéléments émetteurs gamma présentant des raies d'émission sur la plage énergétique étalonnée peuvent être quantifiés.

Raie spécifique (keV)	Intensité (%)	Radionucléide identifié	Famille
63,3	4,80	²³⁴ Th	²³⁸ U
92,8	2,70	²³⁴ Th	
186,2	3,28	²²⁶ Ra	
241,98	7,12	²¹⁴ Pb	
295,2	19,20	²¹⁴ Pb	
351,9	37,20	²¹⁴ Pb	
609,3	46,30	²¹⁴ Bi	
768,3	4,76	²¹⁴ Bi	
1120,28	15,10	²¹⁴ Bi	
1238,11	57,80	²¹⁴ Bi	
1764,52	15,10	²¹⁴ Bi	
911,6	27,70	²²⁸ Ac	²³² Th
964,64	5,05	²²⁸ Ac	
968,97	16,23	²²⁸ Ac	
338,3	11,40	²²⁸ Ac	
583,2	84,40	²⁰⁸ Tl	
860,5	12,40	²⁰⁸ Tl	
77	17,50	²¹² Pb	
238,60	44,60	²¹² Pb	²³⁵ U
185,7	57,20	²³⁵ U	
143,7	10,50	²³⁵ U	⁴⁰ K
1460,8	10,67	⁴⁰ K	

Tableau 7. Caractéristiques des radionuclides identifiés.

A partir de la surface (nombre d'impulsions) des pics, on détermine l'activité de ces radionucléides. Seules les activités supérieures à la limite de détection de la chaîne d'analyse sont exprimées ; dans le cas contraire, la limite de détection précédée du signe « < » est rapportée. L'activité de chaque radioélément présent dans l'échantillon est donnée en becquerel par kilogramme sec (Bq/kg) et becquerel par litre (Bq/L) en fonction des cas.

Le calcul des concentrations d'activité des différents radioéléments présents dans les échantillons a été fait manuellement avec l'utilisation d'un tableur (Microsoft Excel).

II. ANALYSE DU SPECTRE DE LA TERRE NON FERTILISEE

TERRE AGRIGOLE		
Raie spécifique	Activité (Bq/kg)	Radionuclide correspondant
63,3	265,26	²³⁴ Th
92,8	240,35	²³⁴ Th
241,98	60,42	²¹⁴ Pb
295,2	29,37	²¹⁴ Pb
351,9	28,00	²¹⁴ Pb
609,3	23,18	²¹⁴ Bi
768,3	<MDA	²¹⁴ Bi
1120,28	33,93	²¹⁴ Bi
1238,11	<MDA	²¹⁴ Bi
1764,52	<MDA	²¹⁴ Bi
338,3	37,28	²²⁸ Ac
911,6	24,88	²²⁸ Ac
964,64	41,70	²²⁸ Ac
968,97	27,96	²²⁸ Ac
583,2	8,53	²⁰⁸ Tl
860,5	<MDA	²⁰⁸ Tl
77	79,00	²¹² Pb
238,60	28,16	²¹² Pb
186,6	126,26	²²⁶ Ra
143,7	18,02	²³⁵ U
1460,8	329,43	⁴⁰ K

Tableau 8. Activités des radioéléments identifiés dans l'échantillon de sol vierge.

III. ANALYSE DU SPECTRE DES FERTILISANTS UTILISES

FERTILISANT NPK		
Raie spécifique	Activité (Bq/kg)	Radionuclide
63,3	1312,69	²³⁴ Th
92,8	938,11	²³⁴ Th
241,98	180,90	²¹⁴ Pb
295,2	37,45	²¹⁴ Pb
351,9	<MDA	²¹⁴ Pb
609,3	<MDA	²¹⁴ Bi
768,3	301,01	²¹⁴ Bi
1120,28	228,11	²¹⁴ Bi
1238,11	88,88	²¹⁴ Bi
1764,52	<MDA	²¹⁴ Bi
338,3	82,46	²²⁸ Ac
911,6	70,72	²²⁸ Ac
964,64	389,91	²²⁸ Ac
968,97	123,48	²²⁸ Ac
583,2	<MDA	²⁰⁸ Tl
860,5	39,61	²⁰⁸ Tl
77	198,11	²¹² Pb
238,60	<MDA	²¹² Pb
186,6	329,12	²²⁶ Ra
143,7	85,93	²³⁵ U
1460,8	11644,94	⁴⁰ K

Tableau 9. Activités des radioéléments identifiés dans le fertilisant NPK.

FERTILISANT NPKS		
Raie spécifique (keV)	Activité (Bq/kg)	Radioélément
63,3	1785,17	²³⁴ Th
92,8	1304,99	²³⁴ Th
241,98	197,81	²¹⁴ Pb
295,2	96,68	²¹⁴ Pb
351,9	79,84	²¹⁴ Pb
609,3	67,56	²¹⁴ Bi
768,3	218,94	²¹⁴ Bi
1120,28	180,93	²¹⁴ Bi
1238,11	50,81	²¹⁴ Bi
1764,52	67,38	²¹⁴ Bi
338,3	79,27	²²⁸ Ac
911,6	47,57	²²⁸ Ac
964,64	206,70	²²⁸ Ac
968,97	65,67	²²⁸ Ac
583,2	11,34	²⁰⁸ Tl
860,5	20,07	²⁰⁸ Tl

77	233,02	^{212}Pb
238,60	36,32	^{212}Pb
186,6	578,32	^{226}Ra
143,7	86,52	^{235}U
1460,8	5312,23	^{40}K

Tableau 10. Activités des radioéléments identifiés dans le fertilisant NPKs.

IV. ANALYSE DU SPECTRE DE LA TERRE FERTILISEE

TERRE FERTILISEE		
Raie spécifique	Activité (Bq/kg)	radioélément correspondant
63,3	366,35	^{234}Th
92,8	266,06	^{234}Th
241,98	72,26	^{214}Pb
295,2	32,97	^{214}Pb
351,9	32,13	^{214}Pb
609,3	24,75	^{214}Bi
768,3	55,49	^{214}Bi
1120,28	44,49	^{214}Bi
1238,11	<MDA	^{214}Bi
1764,52	32,75	^{214}Bi
911,6	<MDA	^{228}Ac
964,64	50,75	^{228}Ac
968,97	30,80	^{228}Ac
338,3	42,56	^{228}Ac
583,2	<MDA	^{208}Tl
860,5	<MDA	^{208}Tl
77	90,39	^{212}Pb
238,60	33,05	^{212}Pb
186,6	137,22	^{226}Ra
143,7	23,55	^{235}U
1460,8	311,39	^{40}K

Tableau 11. Activités des radioéléments identifiés dans l'échantillon de sol fertilisé.

V. ANALYSE DE L'EAU DE Puits UTILISEE POUR IRRIGATION

EAU		
Pic	Activité (Bq/kg)	Radioélément
63,3	7,04	²³⁴ Th
92,8	13,16	²³⁴ Th
143,7	1,33	²³⁵ U
186,6	1,93	²²⁶ Ra
238,60	0,12	²¹² Pb
295,2	0,08	²¹⁴ Pb
351,9	0,05	²¹⁴ Pb
583,2	0,14	²⁰⁸ Tl

Tableau 12. Activités des radioéléments identifiés dans l'échantillon d'eau d'irrigation.

VI. CALCUL DES ACTIVITES MOYENNES DES DIFFERENTS ECHANTILLONS AVEC LES ERREURS CORRESPONDANTES

Les concentrations d'activité du ²²⁶Ra, ²³²Th et ⁴⁰K ont été déterminées pour les différents types d'échantillons. Les valeurs moyennes des activités mesurées ainsi que les écarts respectifs des radionucléides naturels cités ci-dessus sont présentés dans le tableau 13.

Echantillon	Activité moyenne (Bq kg ⁻¹)			
	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K	¹³⁷ Cs
Terre non fertilisée	47,01±7,3	33±7	329±19	9,9±0,5
Terre fertilisée	53,2±10,6	50,03±7,3	311±18	7,71±0,43
Fertilisant NPK	134,7±24	132±16	11644±550	11,7±0,6
Fertilisant NPKs	190,3±30	117,24±10	5312±249	7,5±0,3
Eau de puits	1,93	0,12	<MDA	<MDA

Tableau 13. Valeurs d'activité du ²²⁶Ra, ²³²Th, ⁴⁰K et ¹³⁷Cs pour tous les échantillons (engrais, eau de puits et sols).

Dans l'ensemble des échantillons, on retrouve pratiquement tous les radioéléments des familles radioactives naturelles (²³⁵U, ²³⁸U, ²³²Th et ⁴⁰K) ainsi que des traces de Césium 137 (voir tableaux ci-dessus). En examinant les résultats, une première interprétation s'impose est que les activités les plus hautes pour tous les radionucléides identifiés sont trouvées dans les deux types de fertilisants (NPK et NPKs) (figures 17 et 18).

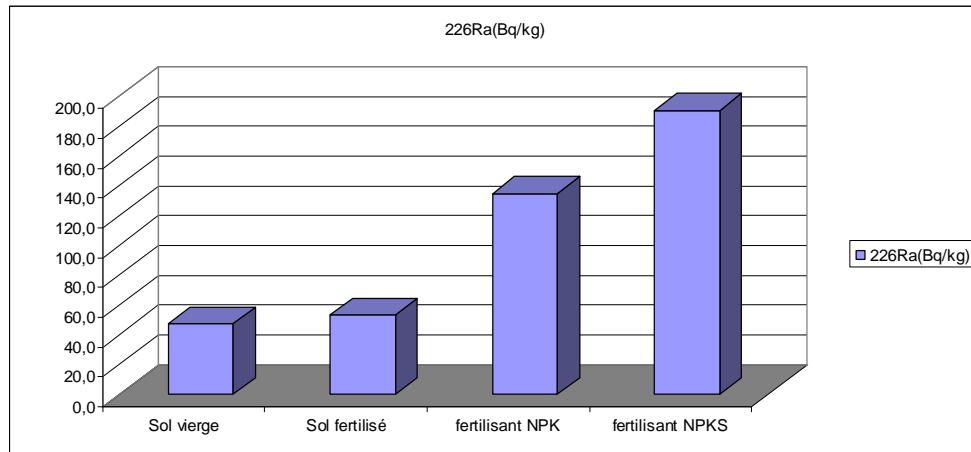


Figure 17. Les activités spécifiques du ^{226}Ra dans les échantillons de sol et de fertilisants.

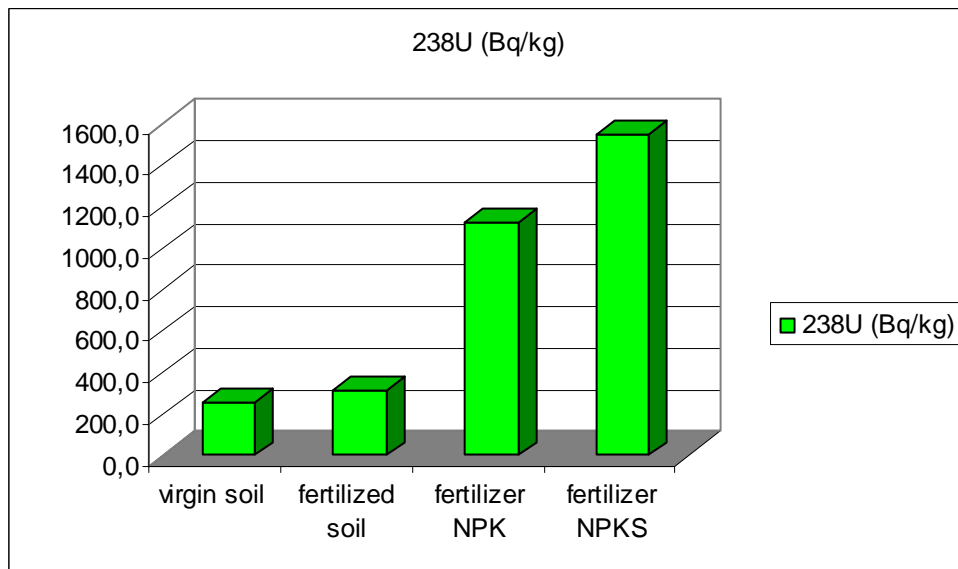


Figure 18. Les activités spécifiques de l' ^{238}U dans les échantillons de sol et de fertilisants.

En ce qui concerne la comparaison mutuelle des sols fertilisé et vierge de la région d'étude, il n'y a pas de changement radical dans les concentrations d'activité dans les deux types de sols. Cependant, une légère tendance à l'augmentation a été observée dans l'activité mesurée du sol fertilisé (voir figure 19).

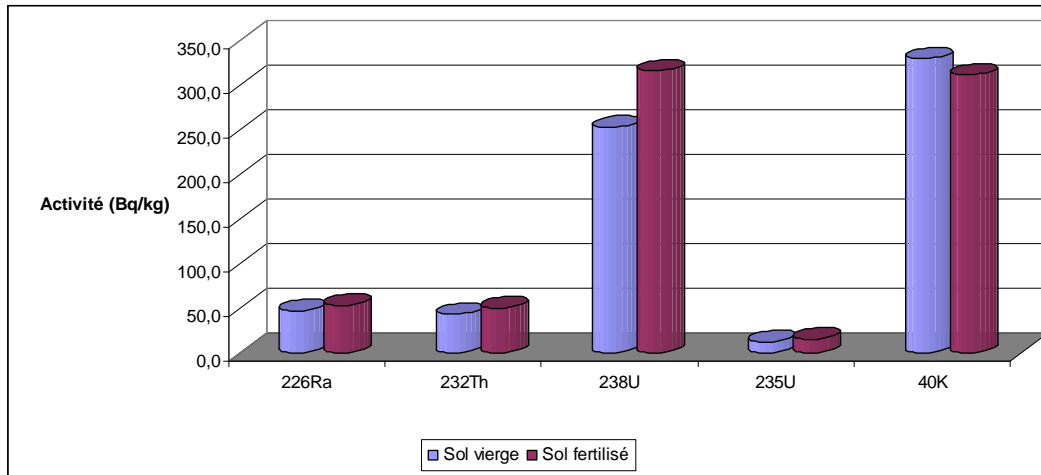


Figure 19. Comparaison de la radioactivité dans les sols vierge et fertilisé.

Les échantillons d'engrais ont montré que les niveaux d'activité étaient plus élevés que les niveaux d'activité admissible qui sont 35, 35 et 400 Bq/kg respectivement pour le ^{226}Ra , ^{232}Th , et ^{40}K (UNSCEAR 2000) (figure 20).

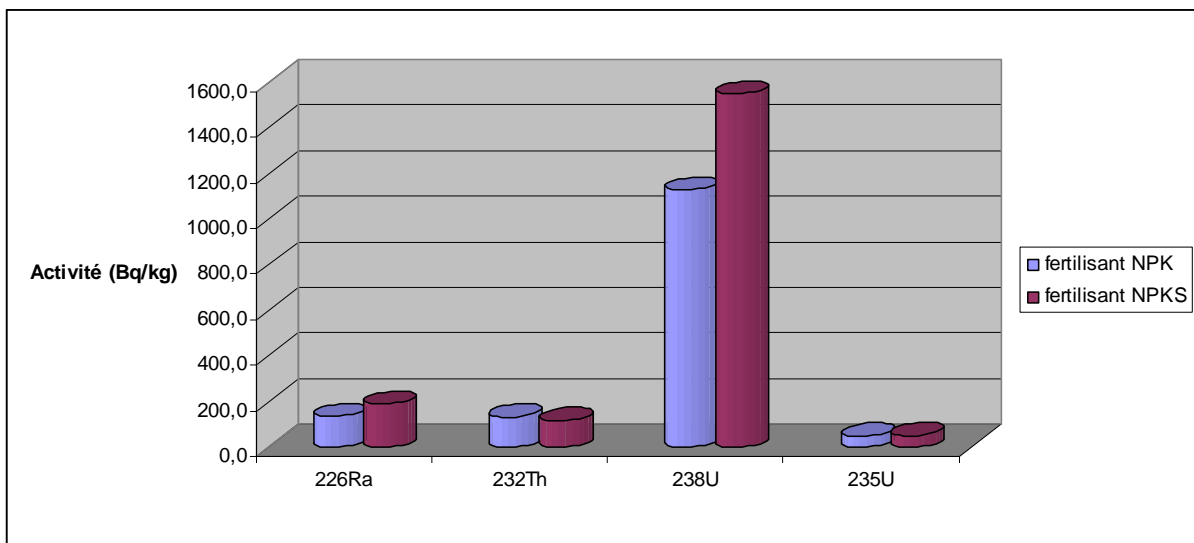


Figure 20. Comparaison de la radioactivité dans les fertilisants NPK et NPKS.

Le radionucléide ^{137}Cs a également été présent à des concentrations mesurables dans tous les échantillons. Il a été trouvé dans les échantillons de sol et d'engrais à des concentrations variant de 7,7 à 11,5 Bq/kg. Dans l'échantillon de l'eau de puits, l'activité a été jugée inférieure à la limite de détection.

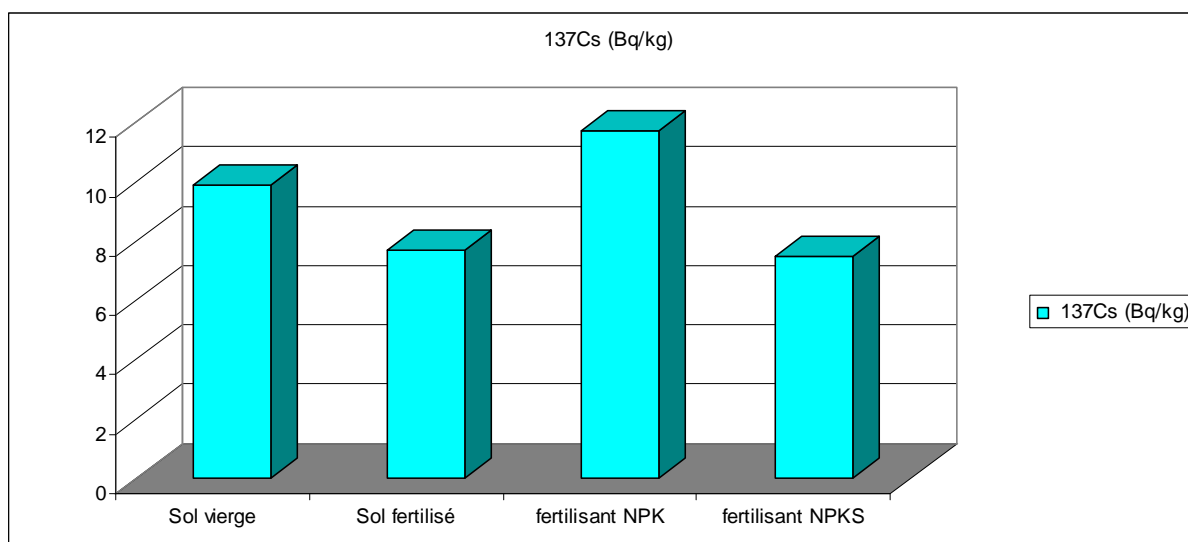


Figure 21. Les activités spécifiques du ^{137}Cs dans les échantillons de sol et de fertilisants.

Les isotopes 238 et 235 de l'uranium sont présents dans l'écorce terrestre depuis sa formation et l'abondance relative de l'uranium-235 par rapport à l'uranium-238 est, à une date donnée, constante dans les milieux naturels à l'exception des « réacteurs nucléaires naturels » tel le gisement d'Oklo au Gabon ou dans les écosystèmes perturbés par les activités humaines liées à la chaîne du combustible ou à l'utilisation militaire de l'atome. Suivant les références bibliographiques, une situation « normale » se caractérise par un rapport $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$: compris entre 21 et 22 s'il s'agit du rapport des activités ou d'environ 138 (voir annexes) s'il s'agit du rapport des masses (Bernollin, 2007). Dans le cadre de cette thèse, on a tenté d'évaluer ce rapport pour les échantillons étudiés. Les résultats sont illustrés dans le tableau suivant :

Echantillon	Activité (Bq/kg)		
	^{238}U	^{235}U	$^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$
Sol vierge	$252,8 \pm 79,1$	$12,16 \pm 1,4$	21
Sol fertilisé	$316,2 \pm 97,6$	$15,16 \pm 1,8$	21
Fertilisant NPK	$1125,4 \pm 328,1$	$49,38 \pm 5,7$	23
Fertilisant NPKs	$1545,08 \pm 431,7$	$50,61 \pm 5,2$	31

Tableau 14. Concentration des activités de l' ^{238}U et de l' ^{235}U des échantillons étudiés.

Le rapport isotopique $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ mesuré pour les échantillons de sol est compatible, compte tenu des marges d'incertitude, avec la valeur de 21,6 typique d'un uranium qui n'est ni enrichi, ni appauvri.

Par contre, on observe pour les fertilisants une contamination en uranium 238. Le rapport isotopique $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ mesuré est compatible avec une valeur de 23 pour le fertilisant NPK alors que ce rapport atteint la valeur de 31 pour le NPKs (voir tableau 14).

Les valeurs de l'activité du thorium 232 varient entre 43 et 50 Bq/kg pour les deux types de sol. On ne constate pas d'excès significatif pour ce radionucléide naturel. Par contre, les valeurs trouvées dans les fertilisants dépassent la valeur admissible par le Comité scientifique des nations Unies pour l'étude des effets des rayonnements ionisants (UNSCEAR) qui est 35 (7-50) Bq/kg. Cette activité varie de 117 jusqu'à 132 Bq/kg (voir figure 22).

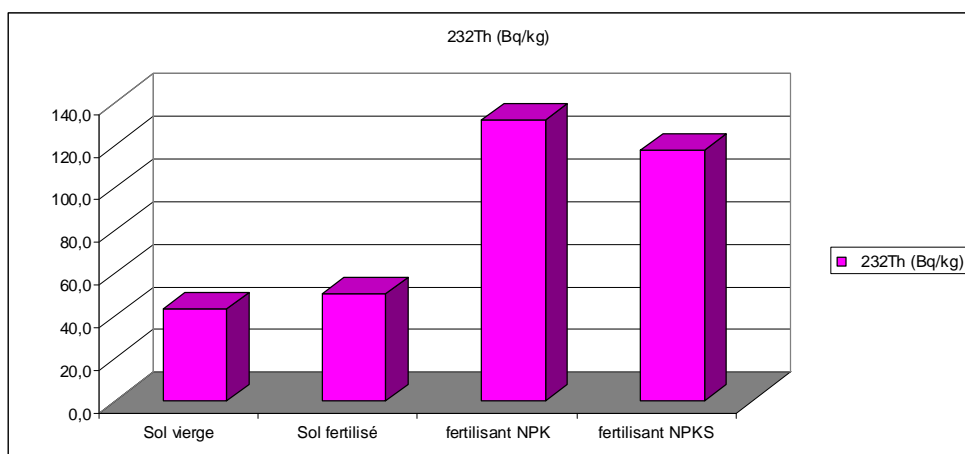


Figure 22. Les activités spécifiques du ^{232}Th dans les échantillons de sol et de fertilisants.

Quant au radionucléide primordial ^{40}K , son activité pour tous les échantillons dépasse la valeur moyenne admissible par l'UNSCEAR qui est 400 Bq/kg. Les valeurs d'activité du ^{40}K dans tous les types d'échantillons sous étude sont plus élevées que celles du ^{226}Ra , ^{232}Th ainsi que tous les radioéléments identifiés (voir figures 23).

Comparaison de la concentration du ^{40}K avec celle des autres radioéléments dans les échantillons de sol et de fertilisants.

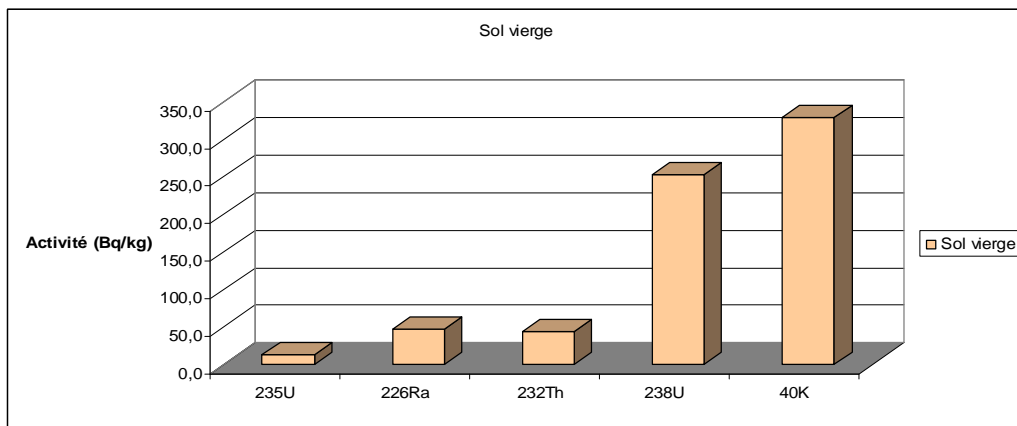


Figure 23. Comparaison de la concentration du ^{40}K avec celle des autres radioéléments dans les échantillons du sol vierge.

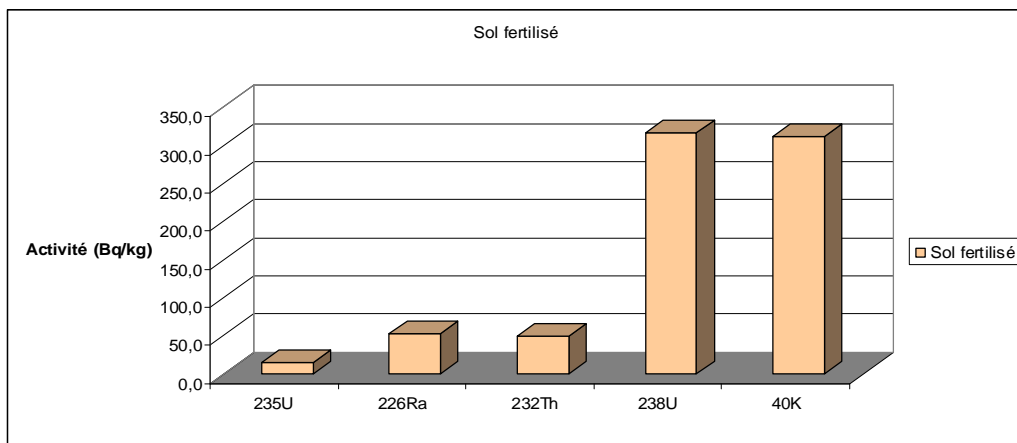


Figure 24. Comparaison de la concentration du ^{40}K avec celle des autres radioéléments dans les échantillons du sol fertilisé.

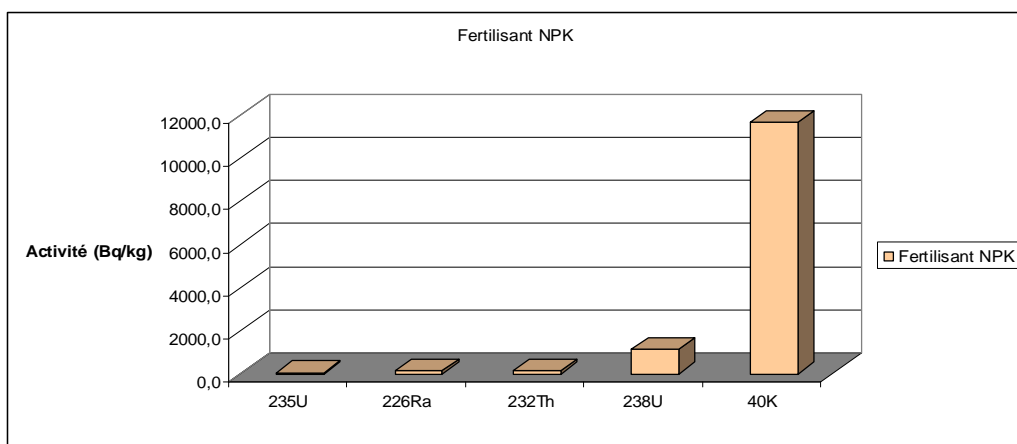


Figure 25. Comparaison de la concentration du ^{40}K avec celle des autres radioéléments dans les échantillons du fertilisant NPK.

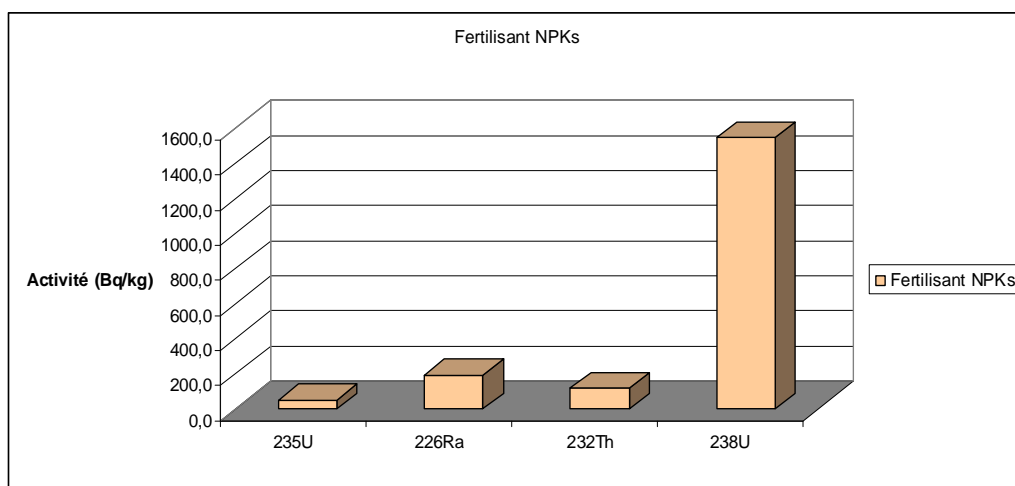


Figure 26. Comparaison de la concentration du ^{40}K avec celle des autres radioéléments dans les échantillons du fertilisant NPKs.

L'utilisation d'engrais en grande partie affecte la concentration des radionucléides, en particulier pour le potassium, il est l'une des causes de la présence d'une forte activité de ^{40}K dans le sol (Bhatti et Malik 1994; Akhtar et al. 2005a, b).

LES INDICES DE RISQUE DES RADIATIONS

Pour représenter le niveau d'activité du ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K par une seule quantité, un indice radiologique commun a été introduit. Cet indice est appelé l'activité du radium équivalent (Ra_{eq}). Dans la définition de Ra_{eq} , il est supposé que 10 Bq/kg de ^{226}Ra , 7 Bq/kg de ^{232}Th et 130 Bq/kg de ^{40}K produisent le même taux de dose de rayon gamma. Elle peut être calculée à partir de la relation suivante (Beretka et Mathew 1985; El-Aydarous 2007) :

$$Ra_{eq} = A_{Ra} + A_{Th} \times 1.43 + A_K \times 0.077 \quad (29)$$

Où: A_{Ra} , A_{Th} et A_K sont les concentrations d'activité du ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K respectivement exprimés en Bq/kg.

Un autre indice de danger d'irradiation appelé l'indice représentatif de niveau $I_{\gamma r}$. C'est aussi un moyen de contrôle de l'excès de la dose dû à ces isotopes qui est indiqué dès que ce facteur dépasse 1. Il est défini par la formule suivante (Ahmed et El-Arabi, 2005):

$$I_{\gamma r} = \frac{1}{150 \text{ Bq/kg}} A_{Ra} + \frac{1}{100 \text{ Bq/kg}} A_{Th} + \frac{1}{1500 \text{ Bq/kg}} A_K \quad (30)$$

Où: A_{Ra} , A_{th} et A_K ayant la même signification que dans L'équation (29).

Le tableau 15 donne les valeurs du radium équivalent Ra_{eq} et de l'indice représentatif de niveau I_{yr} de tous les échantillons étudiés.

Les valeurs calculées pour le radium équivalent dans les échantillons de sols sont inférieures à la valeur maximale autorisée de 400 Bq/kg (Beretka et Mathew, 1985), mais dans les engrais, les valeurs du radium équivalent sont beaucoup plus élevées que la moyenne mondiale. Les valeurs calculées pour les échantillons de l'indice I_{yr} sont présentés au tableau 15. Il est évident que les échantillons d'engrais dépassent la limite supérieure d' I_{yr} qui est l'unité tandis que les échantillons de sol ne dépassent pas cette limite. Le niveau I_{yr} dans les engrais est très élevé.

Echantillon	Ra_{eq} (Bq/kg)	I_{yr}
sol vierge	132 ± 11	0.95 ± 0.05
Sol fertilisé	145 ± 11	1 ± 0.15
Fertilisant NPK	1168 ± 196	9.6 ± 0.68
Fertilisant NPKs	733 ± 96	5.7 ± 0.46
Eau de puits Bq/l	2.1	0

Tableau 15. L'activité du Radium équivalent et l'indice représentatif de niveau, I_{yr} .

COMPARAISON DES CONCENTRATIONS DE L'ACTIVITE AVEC DES ETUDES SIMILAIRES

Les concentrations d'activité du ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K , l'activité du Radium équivalent et l'indice représentatif de niveau I_{yr} dans les échantillons de la zone étudiée et dans les engrais ont été comparés avec des études similaires dans d'autres pays et le résumé des résultats est donné dans le tableau 16.

Selon le rapport du Comité scientifique des Nations Unies pour l'étude des effets des rayonnements ionisants UNSCEAR (2000), la valeur moyenne dans le monde de l'activité du ^{40}K est 140-850 Bq/kg (valeur moyenne 400 Bq/kg). La valeur mesurée de la concentration du ^{40}K pour les deux types de sol, vierge et fertilisé, est située dans la moyenne mondiale. Par contre, les valeurs de concentration du ^{40}K dans les engrais NPK et NPKs se situent entre 14 et 31 fois supérieure à la moyenne mondiale.

Pour le ^{226}Ra et le ^{232}Th , leurs valeurs de concentrations mesurées se situaient dans la fourchette moyenne mondiale, mais il ya une augmentation des valeurs dans le sol fertilisé par rapport au non fertilisé. Les valeurs d'activité pour ^{232}Th et ^{40}K d'engrais phosphatés ont été supérieures aux valeurs des engrais phosphatés égyptiens telles que déterminées par Ahmed et El-Arabi (2005). Les tableaux 16 et 17 montrent que la radioactivité dans les sols et les

engrais varient d'un pays à l'autre. Il est important de souligner que ces valeurs ne sont pas des valeurs représentatives pour les pays mentionnés, mais pour la région d'où les échantillons ont été recueillis.

Pays	Echantillon	Activité (Bq/kg)			Radium Equivalente (Bq/kg)	Indice Niveau I_{yr}	References
		^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K			
Algérie	Fertilisant NPK	134.7	131.8	11644	1168	9,6	présent travail
	Fertilisant NPKs	190.3	117.24	5312	733	5,7	présent travail
Maroc	Fertilisant 1	144					Lamghari et al., 2004
	Fertilisant 2	121	65				Lamghari et al., 2004
	Fertilisant 3	2150	26				Lamghari et al., 2004
Egypte (Qena)	Fertilisant Phosphaté	366	66.7	4	461.7	3.1	Ahmed and El Arabi (2005)
Brésil	Fertilisant NPK	647.6	753.9	603	1772.1*	12.3*	Becegato et al.(2008)
		58	10.82	522,4	113.7*	0.8*	Becegato et al.(2008)

*Calculé par l'auteur.

Tableau 16. Comparaison des activités du Ra_{eq} et de I_{yr} dans les échantillons d'engrais phosphatés étudiés avec ceux d'autres pays.

Pays	Echantillon	Activité (Bq / kg)			Radium Equivalent (Bq/kg)	Indice Niveau I_{yr}	Références
		^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K			
Algérie	sol Fertilisé	53.2	50.03	311	145	1	présent travail
	Sol vierge	47.01	43	329	132	0,95	présent travail
Algérie	Sol	5 - 180	2 - 140	66 - 1150			UNSCEAR(2000) Ahmed and El Arabi (2005)
Egypte (Qena)	Sol agricole	13.7	12.3	1233	126.2	1.04	(2005)
Brésil (Panama)	sol Fertilisé	10.22	7.27	54,75	24.8*	0.2*	Becegato et al.(2008)
	sol Vierge	1.69	5.36	34,15	12.0*	0.1*	Becegato et al.(2008)
Pakistan (Lahor)	Sol Salin	25-28	45-53	525-602			Akhtar et al. (2005)
Pakistan (Pakka Anna)	Sol Vierge	26-31	50-55	500-610			Akhtar et al. (2005)
Pakistan (Pakka Anna)	sol Fertilisé	30-38	50-64	560-635			Akhtar et al. (2005)
Arabie Saoudite Taif	Sol	23.8	18.6	162,8	49.3*	0.5*	El-Aydarous (2007)
Chine(Zhejiang)	Sol	38	57.6	838	184.9*	1.4*	Ziqiang et al. (1988)
Syrie	Sol	20	20	270	69.4*	0.5*	UNSCEAR(2000)
Danemark	Sol	17	19	460	79.6*	0.6*	UNSCEAR(2000)
Bangladesh (Kurigram)	Sol	84	141	1944	435.3*	3.3*	Hamid et al. (2002)
Pakistan (Faisalabad)	Sol	30	56	602	156.4*	1.2*	Tufail et al.(2006)
Inde (Pathankot)	Sol	64	93	124	206.5*	1.4*	Singh et al. (2005)

*Calculé par l'auteur.

Tableau 17. Comparaison des activités du Ra_{eq} et de I_{yr} dans les échantillons de sols étudiés avec ceux d'autres pays.

ETUDE DU DESEQUILIBRE RADIOACTIF ENTRE L' ^{238}U ET LE ^{226}Ra .

On peut déceler un radioélément par le photon qu'il émet lors de sa désintégration. Le photon gamma accompagnant la désintégration de l'uranium 238 a une énergie de 49.55 keV avec une probabilité d'émission 0.064%. Or ce pic est trop faible et ne peut être utilisé pour calculer l'activité de l'uranium 238. Cependant, n'importe quel rayonnement gamma émis par un des nuclides fils peut être utilisé, puisqu'on suppose que le précurseur est en équilibre séculaire avec ses descendants.

Sur cette hypothèse, le calcul de concentration de l'uranium 238 s'est fait, en premier lieu, avec son descendant le radium 226.

Pour confirmer les résultats trouvés, une autre évaluation de l'activité de l' ^{238}U était basée sur les mesures des émissions de son premier descendant ^{234}Th . Les plus importantes émissions sont les raies de valeurs 63.3 keV, 92.38 keV et 92.8 keV. Ces émissions gamma dans les régions du 63 et 93 keV accompagnant la décroissance du ^{234}Th ont toujours été utilisées pour tirer les concentrations de l'uranium.

En effet, dans une situation normale, la teneur naturelle en uranium 238 dans les sédiments ou sols est typiquement de l'ordre de 40 Bq/kg et la chaîne de désintégration est à l'équilibre (autant d'uranium 238 que de radium 226 et autres descendants). Or pour les échantillons de sol étudiés, alors que la teneur en radium 226 est normale (47 et 53 Bq/kg) celle de l'uranium 238 est 5 fois supérieure (jusqu'à 316 Bq/kg dans le sol fertilisé). Ceci montre qu'il s'agit d'un apport d'uranium d'origine industrielle (effet de la fertilisation) dans les échantillons de sol et non pas d'une accumulation de traces d'uranium contenues naturellement dans l'atmosphère (voir figure 24).

De même, les concentrations trouvées de l'uranium 238 dans les fertilisants étaient nettement supérieures (2683 et 2721 Bq/kg) comparées avec la teneur en radium 226 (1125 et 1545 Bq/kg). Pour interpréter cette différence dans les échantillons de phosphate, l'étude a suivi la production du fertilisant phosphaté depuis son gisement en tant que matière première. Pour extraire le fertilisant phosphore de son gisement, l'attaque de la roche de phosphate broyé se fait par l'acide sulfurique. Le mélange donne une bouillie. La filtration de cette bouillie consiste à séparer l'acide phosphorique P_2O_5 du phosphogypse via un filtre rotatif. Or l'uranium dissout aussi sous l'attaque par l'acide sulfurique, alors que le radium reste dans le phosphogypse (Lamghari et al. 2004). La cinétique de libération de l'uranium et ses descendants au cours du processus de production d'acide phosphorique est sous l'étude.

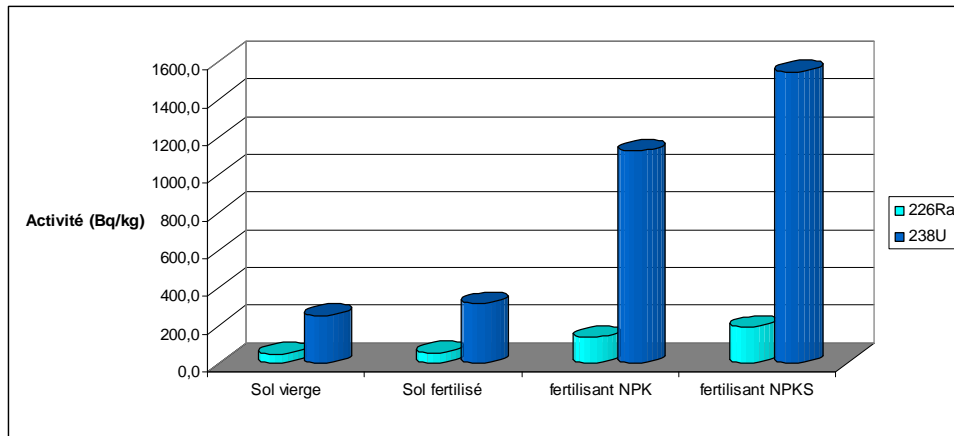


Figure 27. Comparaison des activités spécifiques du ^{226}Ra et de ^{238}U dans les échantillons de sol et de fertilisants.

Ce déséquilibre a été signalé aussi par Lamghari et al. lors d'une étude de radioactivité des fertilisants marocains. La comparaison des activités entre les fertilisants étudiés avec ceux d'un pays voisin qui est le Maroc, donne les résultats illustrés dans le tableau suivant (Lamghari et al. 2004):

pays	Fertilisant	^{235}U	^{238}U	^{226}Ra
Algérie	NPK	49	1125	144
Algérie	NPKs	51	1545	190
Maroc	Fertilisant phosphaté 1	504	2683	144
Maroc	Fertilisant phosphaté 2	171	2721	121

Tableau 18. Comparaison des activités de ^{235}U , ^{238}U et du ^{226}Ra entre fertilisants algériens et d'autres marocains

Ce qu'on peut remarquer sur l'histogramme (figure 24) que la concentration en ^{238}U est nettement supérieure à la concentration du ^{226}Ra pour les fertilisants étudiés et marocains. Ce déséquilibre est expliqué par le fait que lors de l'attaque du phosphate brut avec H_2SO_4 , ^{226}Ra est transféré au phosphogypse, alors que la plupart de l'uranium et le thorium sont dissous avec l'acide phosphorique (lamghari et al. 2004). Les fertilisants phosphatés présente un enrichissement d'uranium.

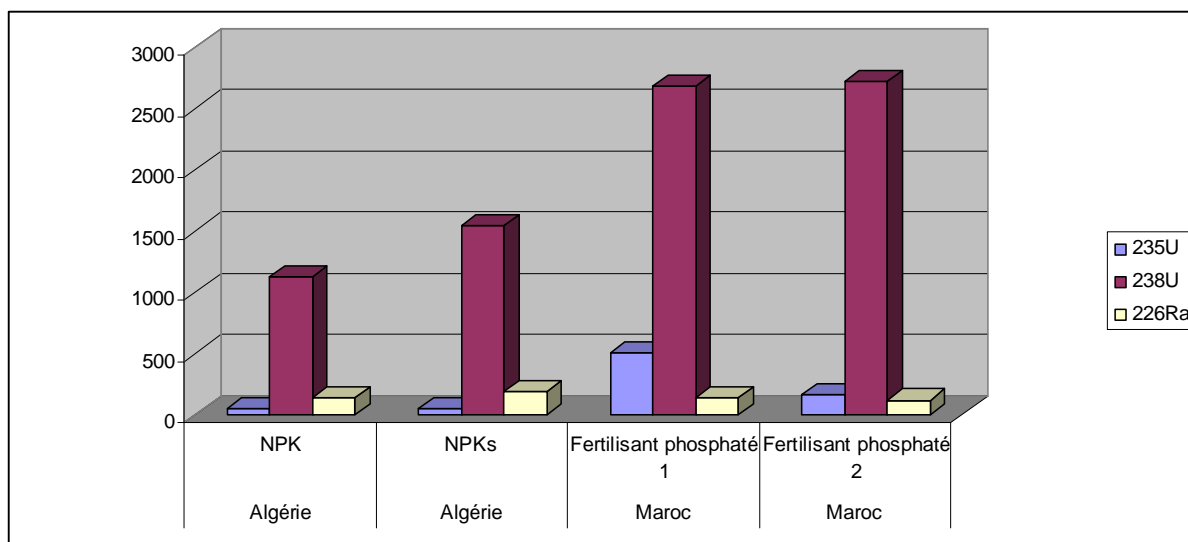


Figure 28. Comparaison des activités de $l^{235}\text{U}$, $l^{238}\text{U}$ et le ^{226}Ra entre fertilisants algériens et marocains.

On remarque que ce déséquilibre a atteint les terres agricoles puisque les résultats montrent que l'uranium 238 présente des valeurs très supérieures comparées au radium 226 (voir tableau 19). Cette augmentation peut avoir un effet radiologique néfaste sur les agriculteurs qui sont en contact permanent avec la terre et les fertilisants.

Echantillon	^{226}Ra	^{238}U
Sol vierge	47,0	252,8
Sol fertilisé	53,2	316,2

Tableau 19. Déséquilibre entre $l^{238}\text{U}$ et le ^{226}Ra dans les échantillons de sol.

Les calculs d'activité se font souvent avec le comptage sous le pic 186.2 du ^{226}Ra pour estimer la concentration de l'uranium 238 en supposant que la chaîne a atteint son équilibre radioactif après un confinement d'une période de quatre semaines en moyenne, qui vaut au moins 7 fois la période du radon 222. En prenant en considération ce déséquilibre, il serait mieux d'estimer l'indice de risque radiologique radium équivalent avec la nouvelle concentration d' ^{238}U et non avec celle du ^{226}Ra . Les indices de radiation prendront les valeurs suivantes (voir tableau 20).

Echantillon	$\text{Ra}_{\text{eq}1}$ (Bq/kg)	I_{yr}	$\text{Ra}_{\text{eq}2}$ (Bq/kg)	I_{yr}
Sol vierge	132,2	0,95	339,7	2,3
Sol fertilisé	145,6	1	411,7	2,8
fertilisant NPK	1168	9,6	2210,5	16,6
fertilisant NPKS	733,7	5,7	2121,7	15,0

Tableau 20. Comparaison des indices de radiation.

Dans l'histogramme de la figure 29, la valeur obtenue pour l'échantillon du NPK présente la plus grande activité de l'indice d'irradiation externe.

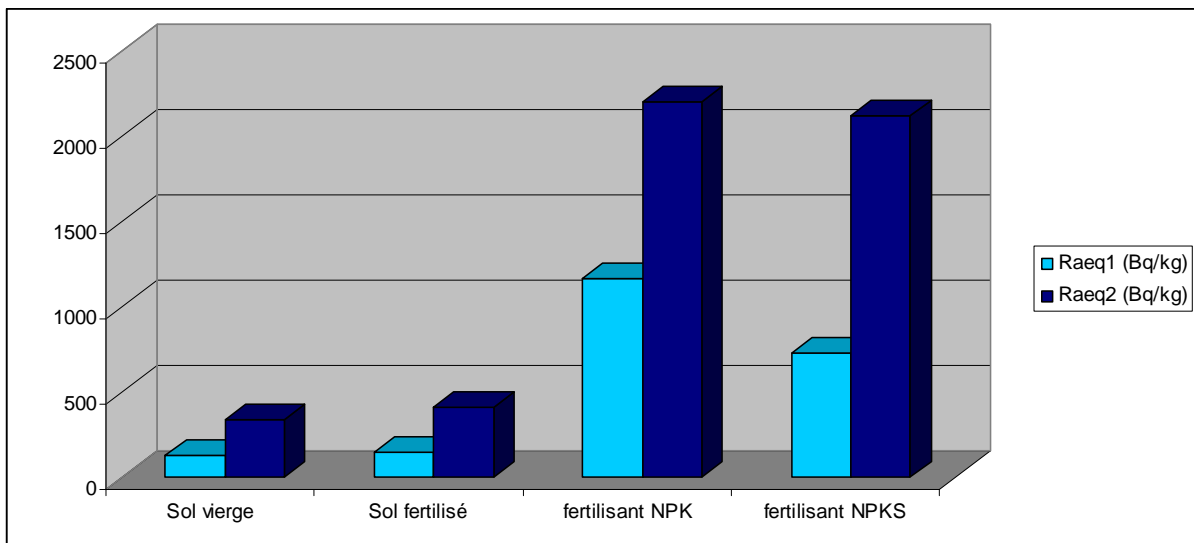


Figure 29. Comparaison des valeurs de Ra_{eq} .

ÉVALUATION DE LA DOSE

La décroissance des radionucléides naturels dans le sol produisent l'exposition des personnes. Les expositions extérieures en plein air proviennent des radionucléides terrestres présents à l'état de traces dans tous les sols. Le débit de dose externe pour les gammas dans l'air est calculé à partir de mesure de la concentration des radionucléides pertinents dans le sol.

Le débit de dose absorbée dans l'air extérieur d'un mètre au-dessus du sol due aux radionucléides ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K dans les échantillons étudiés ont été estimés en utilisant la formule proposée par l'UNSCEAR (1988):

$$D = 0,462 C_U + 0,604 C_{Th} + 0,0417 C_K \quad (31)$$

Où D est la dose totale absorbée (nGy/h).

Dans le rapport UNSCEAR 2000, les coefficients de conversion des concentrations d'uranium, du thorium et du potassium à l'activité débit de dose absorbée dans l'air sont respectivement 0,462, 0.604 et 0.0417. Les résultats de débit de dose absorbée dans l'air sont rassemblés dans le tableau 21.

Les débits de dose des gammas absorbés dans l'air ont été estimés à partir de la concentration de l'isotope de l'uranium en utilisant l'équation 31.

Selon le rapport publié par l'UNCEAR en 2000, les mesures directes des débits de dose absorbée dans l'air ont été effectuées dans les dernières décennies dans de nombreux pays du monde. La moyenne pondérée par la population est de 59 h Gy h^{-1} . Les valeurs moyennes varient de 18 à 93 nGy h^{-1} . Une plage typique de la variabilité des taux de dose absorbée mesurée dans l'air est de 10 à 200 nGy h^{-1} . Etant dans la norme de réglementation, les terres agricoles fertilisées ne présentent aucun risque pour la santé.

Par contre, les doses calculées pour les fertilisants présentent un grand danger pour les travailleurs qui extractent ces phosphates de leur gisement ainsi qu'aux utilisateurs de leurs engrais phosphatés.

Pour estimer le taux de dose efficace annuelle, le facteur de conversion d'une dose absorbée à une dose effective (0.7 Sv Gy^{-1}) et le facteur de pondération (dit aussi le facteur d'occupation), qui implique que 20% du temps est dépensé en plein air (0,2), proposés par l'UNSCEAR 2000 sont utilisés. Par conséquent, le débit de dose efficace annuelle (mSv an^{-1}) a été calculé par la formule suivante:

$$\begin{aligned} \text{Débit de dose efficace } (\text{mSv an}^{-1}) &= \\ D (\text{nGy h}^{-1}) \times 8760 \text{ h yr}^{-1} \times 0.7 \times (10^3 \text{ mSv} / 10^9) \text{ nGy} \times 0.2 &= \\ D (\text{mSv yr}^{-1}) \times 1.23 \times 10^{-3}. & \quad (32) \end{aligned}$$

Le tableau 21 donne le débit de dose estimée dans l'air due à l'uranium et la dose efficace annuelle correspondante dans les différents échantillons sous étude. La moyenne à travers le monde résultant de la dose efficace annuelle est de 0,48 mSv, avec les résultats pour chaque pays étant généralement dans la fourchette de 0,3 à 0.6 mSv. Les résultats montrent que les échantillons de terre agricole soit fertilisée ou non sont dans les normes, par contre les fertilisants présentent des doses qui pourraient être source de contamination pour les utilisateurs.

Echantillon	Débit de dose dans l'air (nGyh ⁻¹)	dose efficace annuelle (mSv yr ⁻¹)
Sol vierge	142,8	0,2
Sol fertilisé	176,3	0,2
Fertilisant NPK	599,5	0,7
Fertilisant NPKS	784,6	1,0

Table 21. *Le débit de dose dans l'air et la dose efficace annuelle correspondante dans les différents échantillons étudiés.*

CONCLUSION

CONCLUSION

Cette étude a permis de présenter les résultats de mesure de la concentration d'activité de deux types de sol agricole (avant et après la fertilisation) et des échantillons d'engrais (NPK et NPKs) d'une région agricole de Sétif en utilisant la technique de spectrométrie gamma.

La comparaison entre les sols avant et après fertilisation de la région d'étude montre qu'il n'y a pas de changement radical dans les concentrations d'activité dans les deux types de sol.

Ces données montrent que l'activité massique de radionucléides naturels dans les échantillons de sol ont été dans les gammes moyennes mondiales, qui sont 35 (10-50), 35 (7-50) et 370 (100-700) Bq/kg pour le ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K respectivement (UNSCEAR, 2000). Toutefois, les échantillons d'engrais montrent des concentrations plus élevées que celles du sol.

Le calcul de l'activité de l'uranium à travers ses descendants a révélé beaucoup de secrets. L'étude a commencé par le calcul de l'activité à travers son descendant ^{226}Ra en supposant avoir suivi les étapes de préparation et de confinement des échantillons pour atteindre l'équilibre radioactif.

Une curiosité a mené de refaire les calculs avec le premier descendant de l'uranium 238, qui est le thorium 234. Un déséquilibre radioactif a été observé entre la concentration de l'uranium 238 et son descendant radium 226 dans la même chaîne radioactive.

Ce déséquilibre est signalé dans les deux types d'échantillons (sol et fertilisants). Le déséquilibre trouvé dans les fertilisants est dû au mode de traitement de la matière première des fertilisants. Alors que le déséquilibre dans les sols montre qu'il s'agit d'un apport d'uranium d'origine industrielle (effet de la fertilisation) et non pas d'une accumulation de traces d'uranium contenues naturellement dans l'atmosphère.

Le développement de l'industrie chimique consacrée à la production de l'acide phosphorique de la roche de phosphate et l'utilisation croissante des engrais phosphatés dans l'agriculture contribuent à la redistribution de la radioactivité naturelle dans l'environnement, essentiellement l'Uranium et ses produits de désintégration.

Pour le calcul des activités du thorium, on ne constate pas d'excès significatif pour ce radionucléide naturel. Par contre, les valeurs trouvées dans les fertilisants dépassent la valeur admissible par le Comité scientifique des nations Unies pour l'étude des effets des rayonnements ionisants (UNSCEAR).

Le radionucléide ^{137}Cs a également été présent à des concentrations mesurables dans tous les échantillons mais non alarmantes.

Les concentrations d'activité du ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K , l'activité du Radium équivalent et l'indice représentatif de niveau Iyr dans les échantillons de la zone étudiée et dans les engrais ont été comparés avec des études similaires dans d'autres pays.

L'utilisation d'engrais en grande partie a affecté la concentration des radionucléides, en particulier les engrais contenant du potassium sont une des causes de la présence d'une activité élevée de ^{40}K dans le sol. L'application de ces engrais a comme effet l'accumulation de radioactivité dans les sols qui peut être nocive pour la santé des agriculteurs et des consommateurs des produits.

Un calcul de débit de dose dans l'air et de la dose efficace annuelle a été aussi mené. Les résultats montrent que les échantillons de terre agricole soit fertilisée ou non sont dans les normes, par contre les fertilisants présentent des doses qui pourraient être source de contamination pour les utilisateurs.

REFERENCES

REFERENCES

- Abbady, A., El-Arabi, A. M., Abbady, A.G.E., Taha, S., 2008. Gamma-ray measurements of natural radioactivity in cultivated and reclaimed soil, Upper Egypt. *International Conference on Radioecology and environmental radioactivity- 15-20 June, Bergen, Norway.*
- Abdul Ahad, *Measurement of natural radioactivity in soil, indoor radon level and excess cancer risk in Bahawalpur division*, these de doctorat en philosophie , université Bahawalpur, Pakistan, 2004.
- Ahmed, N. K., El-Arabi, A.G. M., 2005. Natural radioactivity in farm soil and phosphate fertilizer and its environmental implications in Qena governorate, Upper Egypt. *Journal of Environmental Radioactivity*, 84, 51-64.
- Akhtar, N., Tufail, M., Ashraf, M., 2005. Natural environmental radioactivity and estimation of radiation exposure from saline soils. *International Journal of Environmental Science & Technology*, Vol. 1, No. 4, 279-285.
- Akhtar, N., Tufail, M. Ashraf, M. Mohsin Iqbal, M., 2005. Measurement of environmental radioactivity for estimation of radiation exposure from saline soil of Lahore, Pakistan. *Radiation Measurements* 39, 11 – 14.
- Antony, M.S., *Chart of nuclides*, Strasbourg, 1992.
- Barka N., *Etude comparative des propriétés d'adsorption de quelques micropolluants sur les phosphates naturels et le charbon actif*. Université Ibn Zohr, Agadir - Diplôme d'études supérieures appliquées de chimie. Soutenu le 04/12/2004.
- Baudoin F., Petriz R., *Les phosphates, formation, exploitation, applications aux engrais, impacts sur l'environnement*, Licence 2 STE, 2010. Université de Montpellier 2 Sciences et Technologies
- Becegato, V.A., Ferreira, F.J.F, Machado, W.C.P., 2008. Concentration of Radioactive Elements (U, Th and K) Derived from Phosphatic Fertilizers in Cultivated Soils. *Brazilian Archives of Biology and Technology*, Vol. 51, n. 6, 1255-1266.
- Beck, H.L., Decompo, J., Gologak, J., 1972. *In situ Ge(Li) and NaI(Tl) Gamma Ray Spectrometry*. Health and safety laboratory AEC, New York, Report HASL258.
- Beretka, J., Mathew, P.J., 1985. Natural radioactivity of Australian building materials, Industrial wastes and by-products. *Health Physics* 48, 87-95.

- Bernollin A., Bonte Ph., Lefevre I et Pigree G., *Origine des éléments de la famille de l'uranium-235 observés dans la rivière Ellez à proximité du réacteur nucléaire expérimental EL4 en cours de démantèlement. Résultats et premiers constats année 2006.* Rapport d'étude du Laboratoire des sciences du climat et de l'environnement (LSCE). 2007.
- Bertel, E., *Cycle du combustible nucléaire*, Technique de l'ingénieur, traité génie énergétique, 1992.
- Bhatti, T.M., Malik, K.A. 1994. Phosphate fertilizers as a potential source for Uranium recovery as by product. A technical Report on Paec/NIBGE-2/1994. National Institute for Biotechnology & Genetic Engineering (NIBGE), Faisalabad.
- Blanc D., *Précis de physique nucléaire*, Dunod, Paris, 1981.
- Bouwer, F.J., MeKlveen, J.W., McDowell, W.J., 1978. Uranium assay of phosphate fertilizers and other phosphatic materials. *Health Physics* 34, 345-352.
- Brunswick, Laboratoire des sols du ministère de l'Agriculture, des Pêches et de l'Aquaculture, *Guide de fertilisation des cultures*, Direction de l'aménagement des terres, Mars 2001, Canada.
- CAN, <http://www.canberra.cm>, consulté le 26/12/2010.
- Conseil international du Café, 102^e session, *Étude sur les prix des engrais*, 18 – 20 mars 2009, Londres, Angleterre.
- Coulon M. R., *Spectrométrie gamma haute résolution et hauts taux de comptage sur primaire de réacteur de type génération 4 au sodium liquide*, thèse de doctorat de l'université de Caen spécialité : génie des procédés soutenue novembre 2010. Université de Caen Basse-Normandie.
- Courtine F., *Etalonnage d'un spectromètre gamma en vue de la mesure de la radioactivité naturelle, Mesures expérimentales et modélisation par techniques de Monte-Carlo*. Thèse de docteur d'université soutenu mars 2007 Université Blaise Pascal France.
- El-Aydarous, A., 2007. Gamma Radioactivity Levels and Their Corresponding External Exposure of Some Soil Samples from Taif Governorate, Saudi Arabia. *Global Journal of Environmental research*, 1 (2), 49-53.
- FAO, La Division de la mise en valeur des terres et des eaux de la FAO et de l'Agence internationale de l'énergie atomique. *Utilisation des phosphates naturels pour une agriculture durable*, bulletin FAO engrais et nutrition végétale 13, organisation des nations unies pour l'alimentation et l'agriculture, Rome, 2004.

- FOULQUIER, L., *Radioécologie-Origine des radioéléments*, Techniques de l'ingénieur BN3908, 2002.
- Gachon L., *Phosphore et potassium dans les relations sol-plante : conséquences sur la Fertilisation*, Institut national de la recherche agronomique. Edition INRA, Paris, 1988.
- Hamdy, A., Diab, H. M., El-Fiki, S. A., Nouh, S. A., 2007. Natural Radioactivity In The Cultivated Land Around A Fertilizer Factory. *The Second All African IRPA Regional Radiation Protection Congress 22-26 April 2007* Ismailia Egypt.
- Hussain, A., 1994. Determination of uranium and thorium concentration in rock samples. *Journal of Radioanalytical and Nuclear chemistry*. 188 (4), 255–265.
- Hustache Ottini S., Buskalic D., Bouchez J., Nappi E., Savajols H., Guidal M., Pouthas J., Duchêne G., Pussieux T., Loiselet M., Salati P., *Physique nucléaire instrumentale- De la Mesure à la Grandeur Physique-*, Ecole internationale Joliot-Curie de physique nucléaire, Maubuisson, France, 20ème session, 9-15 Septembre 2001.
- Kam, E., Bozkurt, A., 2007. Environmental radioactivity measurements in Kastamonu region of northern Turkey. *Applied Radiation and Isotopes* 65, 440–444.
- Ksouri A., *Mesure de la Radioactivité dans les Produits Détergents par Spectrométrie Gamma*, Mémoire d'Ingénieur en Sciences Appliquées et en Technologie Filière : Chimie Industrielle. Soutenu Janvier 2010.
- Lyoussi, A., 2010. *Détection de rayonnements et instrumentation nucléaire*. Collection Génie Atomique.
- MEYERHOF, W. E., *Eléments de physique nucléaire*, Dunod, Paris, 1985.
- Michel P., *Production de concentrés d'uranium naturel*, Technique de l'ingénieur, traité génie énergétique, 1992.
- Morucci, J.P., Lansart, A., Morretti, J.L., *La détection et la visualisation des rayonnements en médecine nucléaire*, Masson, Paris, 1981.
- Papachristodoulou, C.A., Assimakopoulos, P.A., Patronis, N.E., Ioannides, K.G., 2003. Use of HPGe γ -ray spectrometry to assess the isotopic composition of uranium in soils. *Journal of Environmental Radioactivity* 64, 195-203.
- Paulin R. "Radionucléides naturels" in: *Toxiques Nucléaires*, Galle P., 2^e édition (édition Masson) pp 3-22. 1997.
- Pfister, H., Philipp, G., Pault, H., 1976. Population dose from natural radionuclides in phosphate fertilizers. *Radiation and Environmental Biophysics* 13 (3), 247-261.

- Pirard B., *Etude et validation d'un spectromètre gamma pour la mesure de la composition chimique des surfaces planétaires- Application à une mission vers Mercure*, thèse de Doctorat de l'Université Toulouse III, Spécialité : Instrumentation Spatiale, soutenue décembre 2006.
- Poty B., Roux J., *Minerais d'uranium*, Technique de l'ingénieur, Traité génie énergétique, 1992.
- Roth E., *Chimie nucléaire appliquée*, édition Masson & CIE, Paris, 1968.
- Scholten, L.C., Timmermans, C.W.M., 1996. Natural radioactivity in phosphate fertilizers. Correction of publication year from 1996. *Fertilizer Research* 43 (1-3), 103-107.
- Singh, S., Rani, A., Mahajan, R.K., 2005. ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K analysis in soil samples from some areas of Punjab and Himachal Pradesh, India using gamma ray spectrometry. *Radiation Measurements* 39, 431 – 439.
- Skorovarov, J.I., Rusin, L.I., Lomonsov, A.V., Chaforian, H., Hashemi, A., Novaseqhi, H., 2000. Development of Uranium extraction technology from phosphoric acid solutions with extract. *Proc. Int. Conf. Uranium Extraction from Soil* 217, 106–113.
- Slansky M., *Géologie des phosphates sédimentaires*, mémoire du BRGM n°114, Bureau de recherches géologiques et minières, 1980.
- Spalding, R.F., Sackett, W.M., 1972. Uranium in runoff from the Gulf of Mexico distribution province, Anomalous concentration. *Science* 175, 629-631.
- Tufail, M., Akhtar, N., M.Waqas, M., 2006. Measurement of terrestrial radiation for assessment of gamma dose from cultivated and barren saline soils of Faisalabad in Pakistan. *Radiation Measurements* 41, 443 – 451.
- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. UNSCEAR 2000. Report to the general assembly, with scientific annexes. *Sources and effects of ionizing radiation*. United Nations, New York.
- United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, UNSCEAR 2008 volume I, Sources and effects of ionizing radiation, report to the general assembly with scientific annexes.
- Untereiner, G., *Etude de l'impact de bactéries environnementales sur la spéciation de l'uranium en vue de processus de bioremediation*, thèse de doctorat, l'Institut des Sciences et Industries du Vivant et de l'Environnement (Agro Paris Tech), Novembre 2008.
- Yannick, A., Phy 113 : *Cours de radioactivité*, pp. 6-13, 2007.
- Ziqiang, P., Yang, Y., Mingqiang, G., 1988. Natural radiation and radioactivity in China. *Radiation Protection Dosimetry* 24 (1/4), 29-38.

ANNEXES

ANNEXES

ANNEXE 1

Types de minerais de phosphate

Ü Autunite sur barite: Bergen, Vogtland - Museum de Bonn, Allemagne.



Ü Autunite: Daybreak Mine, Washington, USA.



Ü Torbernite - Mine de Margabal, Entraygues Aveyron France.



Ü Torbernite - Entraygues, Aveyron, France.



Ü Turquoise et [quartz](#) - [Arizona](#), [États-Unis](#).



Ü Turquoise – montagnes Al-mirsah-kuh, Iran.



Ü Xénotime - Zagi Mountain, Pakistan



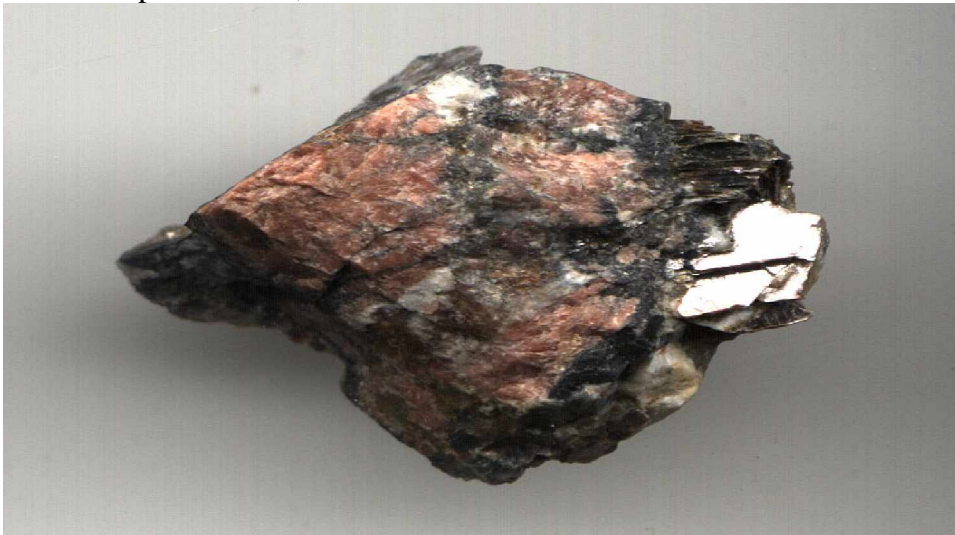
Ü Triplite - Alchuri, Shigar Valley, Baltistan, Pakistan.



Ü Fluorapatite. Chumar-Bakar, Hunza, Pakistan



Ü Triplite - [Viitaniemi](#), Finlande.



Ü Brazilianite Conselheiro Pena, Brésil.



ANNEXE 2

Calcul des concentrations de l'uranium 235 et l'uranium 238 dans les différents échantillons étudiés.

Tableau 1. Concentration des isotopes de l'uranium (en ppm) dans les échantillons sous étude.

Echantillon	concentration (ppm)	
	^{238}U	^{235}U
Sol vierge	20,3	0,2
Sol fertilisé	25,4	0,2
Fertilisant NPK	90,5	0,6
Fertilisant NPKs	124,2	0,6

Figure1.

Différents niveaux de concentrations de l' ^{235}U dans les échantillons étudiés.

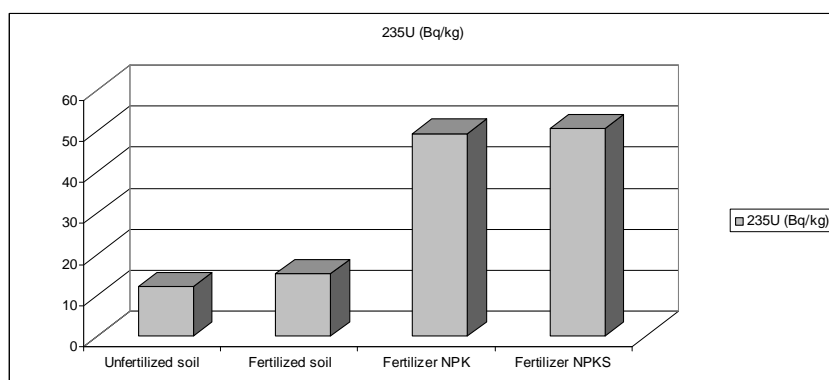
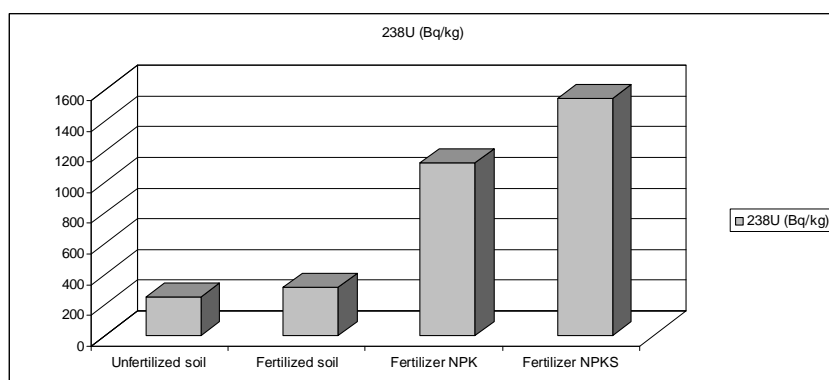
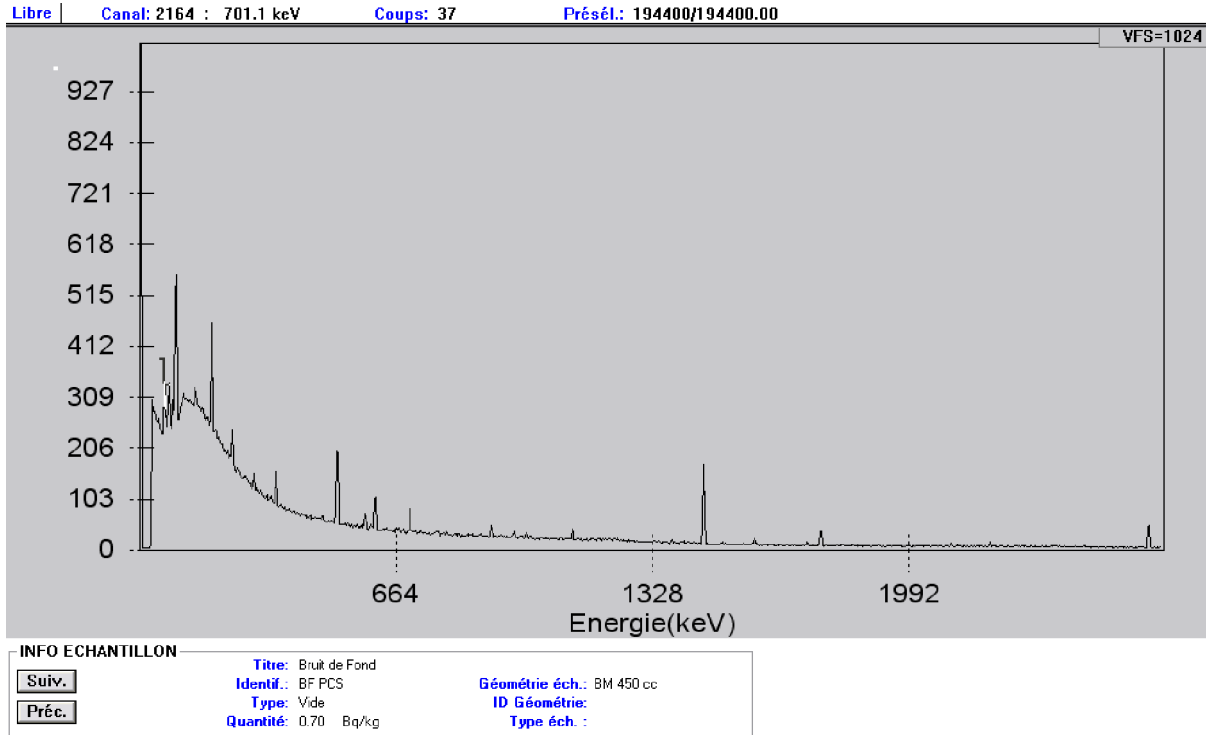


Figure 2: Différents niveaux de concentrations de l' ^{238}U dans les échantillons étudiés.

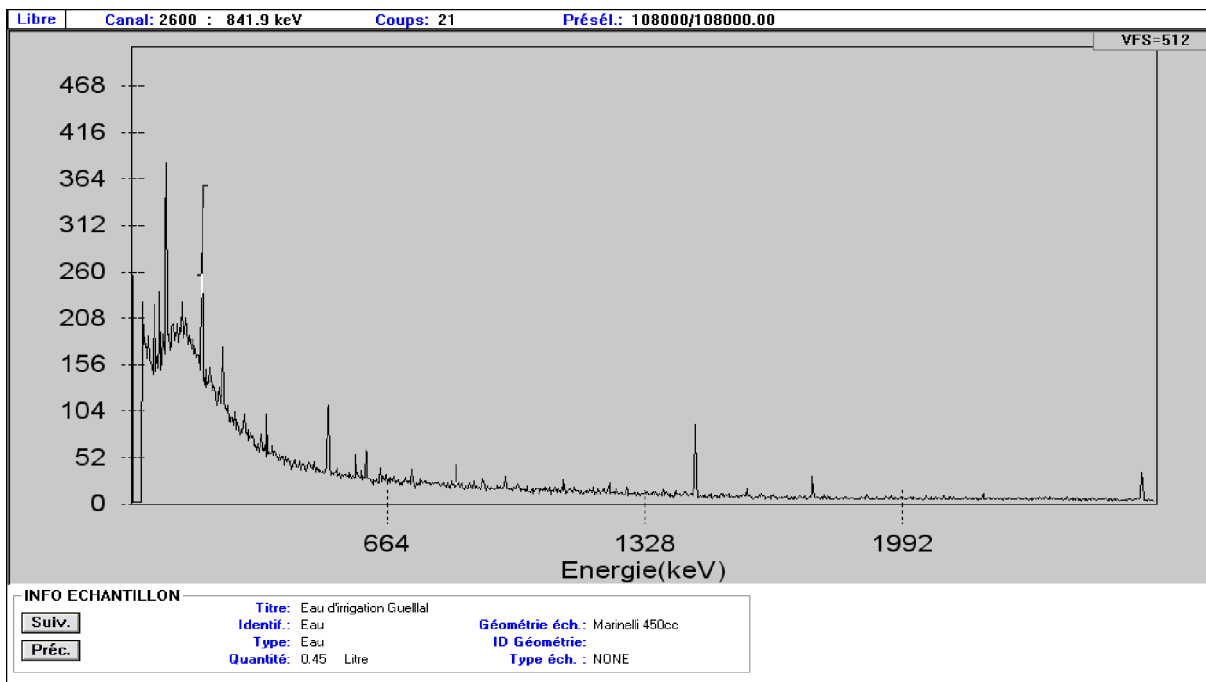


ANNEXE 3

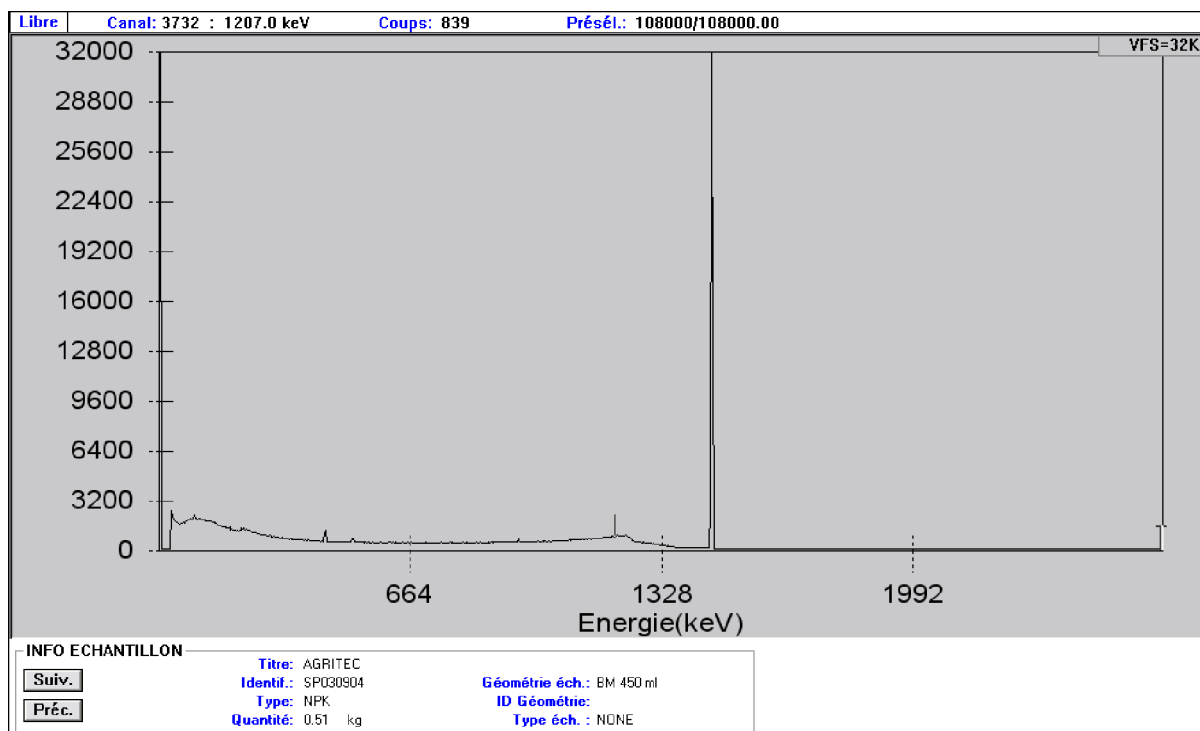
Spectre de radioactivité du bruit de fond.



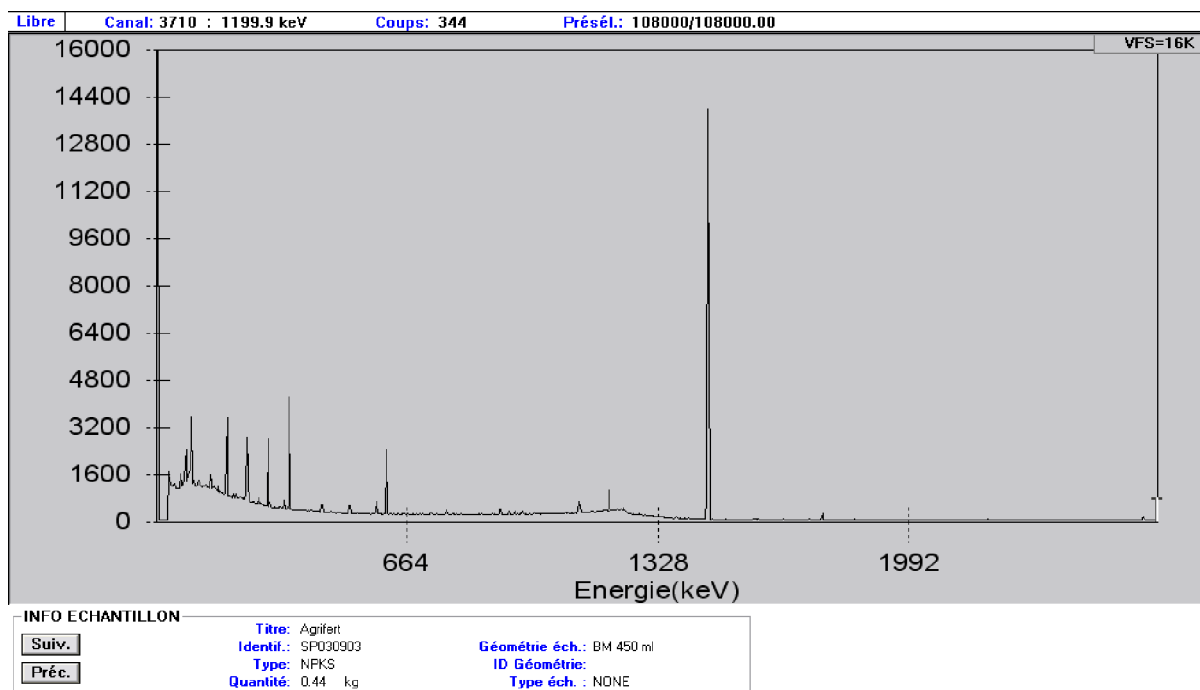
Spectre de l'échantillon d'eau d'irrigation



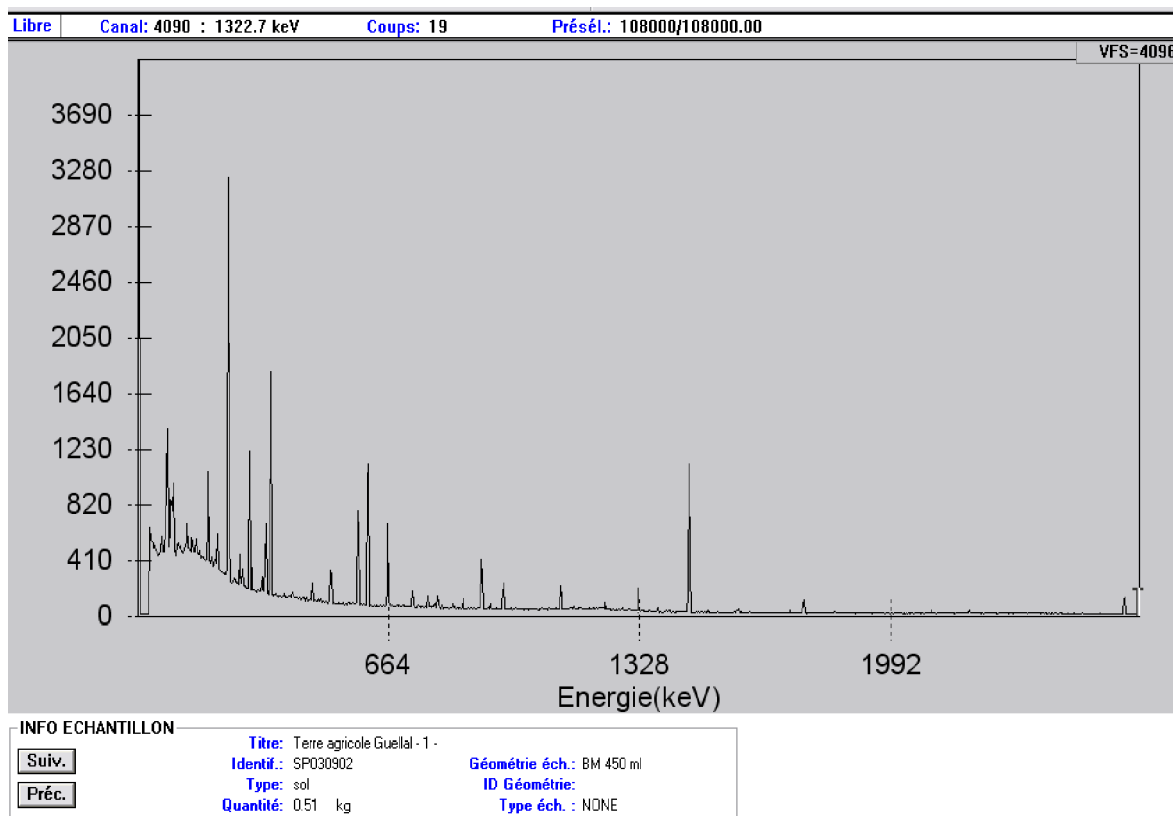
Spectre du fertilisant NPK



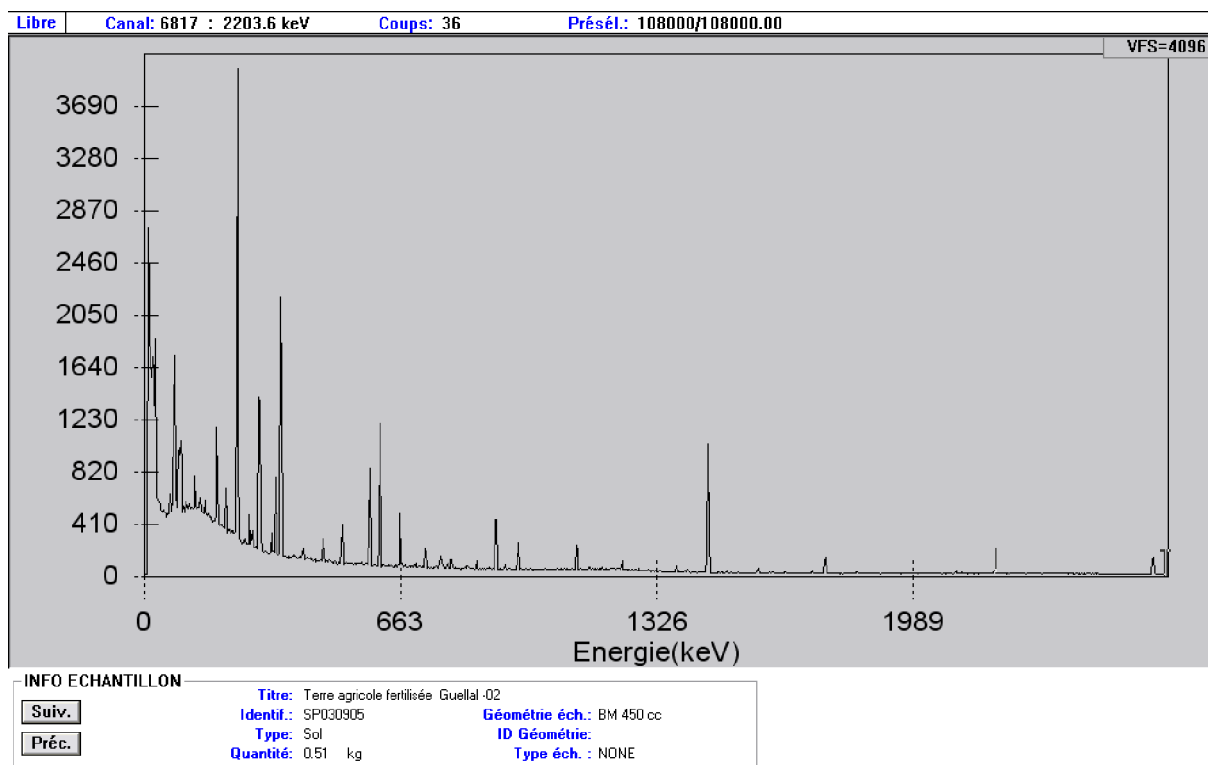
Spectre du fertilisant NPKs



Spectre de la terre agricole avant fertilisation



Spectre de la terre agricole fertilisée



ANNEXE 4

Spécification du détecteur utilisé

Spécifications

Modèle PCS61R

Numéro de série 1168

Spécification et données de performance de ce détecteur est comme suivant

Efficacité relative 10%

Résolution 1.8 keV (FWHM) à 1.33 Mev

Description du cryostat ou son numéro Vertical Disptic, type 7500L

Les caractéristiques physiques

Géométrie Coaxial one open end, closed end facing window

Diamètre 51 mm

Longueur 37 mm

Diamètre à partir de la fenêtre 5 mm

Les caractéristiques électriques

Voltage (+) 2000 Vde

Voltage recommande pris à partir (+) 2500 Vde

Fuit de courant recommandé à 0.1 nA

Voltage du point de test préamplificateur au voltage recommandé -1.0 Vde

Résolution et efficacité

Avec un temps constant 4 μ s

ANNEXE 5

GLOSSAIRE

- **DAP** : Di-Ammonium Phosphate, engrais phosphaté avec une teneur moyenne en P_2O_5 de 46%.
- **TSP** : Superphosphate Triple, engrais simple à un seul élément fertilisant (phosphore).
- **ASP** : Ammonium Sulfo-Phosphate.
- **MAP** : Mono-Ammonium Phosphate, engrais binaires à 2 éléments fertilisants (phosphore et azote).
- **NPK** : Engrais complexe, il renferme les trois éléments nutritifs primaires (azote, phosphore et potassium).
- **SSP** : Superphosphate simple.
- **Pyrophorique** : Qui possède une combustion spontanée sous atmosphère oxydante.
- **Oxocation** : est un ion positif polyatomique contenant l'élément oxygène.
- **Hydrolyse** : d'une substance est sa décomposition par l'eau grâce aux ions H_3O^+ et HO^- provenant de la dissociation de l'eau.
- **Granite** : roche magmatique plutonique à structure grenue. Il est formé de cristaux de quartz, de micas, de feldspaths potassiques et de plagioclases.
- **Uranite** : Terme général pour les phosphates naturels d'uranium tels que l'autunite.
- **ppb**, sigle de partie par milliard qui correspond à 10^{-9} .
- **ppm** est un sigle qui signifie Partie par million, correspond à 10^{-6} .
- **Ostéosarcome** est la plus courante des tumeurs malignes osseuses primaires.
- **cosmo-nucléides** : radionucléides d'origine cosmique émetteurs de rayonnements radioactifs cosmogéniques
- **1nGy = 1Sv**
- **FAO** : Organisation des nations unies pour l'alimentation et l'agriculture (Food and Agriculture Organization of the united nations).
- **UNSCEAR** : Comité scientifique des nations Unies pour l'étude des effets des rayonnements ionisants (**United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation**).