

# **MEMOIRE**

En vue de l'obtention du

# MASTER PROFESSIONNEL

# Physique Energétique

### Délivré par:

Faculté des Sciences de l'Université Libanaise

### Présenté et soutenu par : Walid Abed Tarraf

le jeudi 10 septembre 2015

#### Titre

Technologie de mesure de la radioactivité et des détecteurs de rayonnement

### Encadrant

Pr.Salah Hamiyeh

#### Lecteurs

Pr.Omar El Samad Dr.Hicham El Falou



Université Libanaise - Faculté des Sciences - www.fsciences.ul.edu.lb

### Introduction

La radioactivité fait partie de l'univers. Sans aucune intervention humaine, elle est présente partout. L'atmosphère et la croûte terrestre contiennent des éléments radioactifs. Dès la formation de la Terre, il y a environ cinq milliards d'années, la matière était constituée d'éléments radioactifs et d'éléments stables.

Actuellement les principaux radionucléides naturels sont le Potassium-40 (<sup>40</sup>K) et ceux issus des trois familles radioactives de l'Uranium-238 (<sup>238</sup>U), de l'Uranium-235 (<sup>235</sup>U) et du Thorium-232 (<sup>232</sup>Th) [1]. Ces éléments radioactifs se retrouvent dans le sol, les roches [2], dans l'air, dans l'eau et dans les organismes vivants, dont ils varient selon la nature du sol et autres facteurs géographiques [3].

Aussi beaucoup de radionucléides d'origine artificielle ont été rejetés dans l'environnement par des procédés différents. Les isotopes du césium (134Cs; 137Cs) sont parmi les plus importants qui peuvent être déposés par les retombées sur le sol et les plantes car ils sont produits anthropogénique par plusieurs types d'activités nucléaires [4], comme les armes et les accidents nucléaires (l'accident de Tchernobyl 1986). Ces radio-isotopes, présentent un risque d'accumulation et de concentration de polluants radioactifs pour l'environnement, surtout qu'ils peuvent être remobilisés sous l'effet de l'érosion.

La mesure de la teneur naturelle et artificielle de la radioactivité dans le sol est très importante pour fixer un niveau de référence et puis tracer la tendance avec le temps à la suite de tout rejet radioactif pour l'application de la norme de protection du publique et environnemental.

Un programme national de surveillance de rayonnement était établi depuis l'année 1997 au Liban par le département de contrôle des rayonnements dans l'environnement à la Commission Libanaise de l'Energie Atomique (CLEA). Des mesures de la radioactivité naturelles et artificielles dans le sol, l'eau et l'air dans les régions de Liban nord [5], Mont-Liban, sud, et quelques endroits de Bekaa ont été évaluées.

Une partie de ce programme est l'analyse des échantillons de sol prélevés dans les zones non cultivées le long du territoire libanais, afin de définir un niveau de radioactivité de référence et par conséquent d'établir une carte radioactive nationale pour le sol libanais.

Dans ce travail, et comme objectif, on a continué une partie de ce programme, des échantillons ont été prélevés dans 30 endroits au Bekaa. Les concentrations massiques en activité (Bq/kg) des radionucléides naturels et artificiels ont été déterminées, le rayonnement gamma émis par les radionucléides présents a été mesuré, les concentrations de l'activité surfacique (Bq/m²) ont été présentées, le débit de dose dans l'air a été calculé et la dose efficace annuelle correspondante a été déduite à chaque emplacement d'échantillonnage.

Dans ce mémoire, le premier chapitre est consacré à une synthèse bibliographique sur le sujet du stage: les notions fondamentales de la radioactivité, divers types de détecteurs, les principes de radioprotection et les effets biologiques de radiation.

Le deuxième chapitre rappelle la spectrométrie gamma, la chaine de mesure et la lecture du spectre.

Le troisième chapitre a pour objet de traiter l'aspect méthodologique et présenter la stratégie de l'échantillonnage, préparation de l'échantillon, l'instrumentation de l'assurance de qualité et l'identification des radionucléides présentes dans l'échantillon et leurs concentrations de l'activité.

Le quatrième chapitre présente les résultats recueillis, les explique et les discute.

# CHAPITRE I: RADIOACTIVITE ET RADIATION

#### 1.1 Définition

La radioactivité est un phénomène naturel découvert à la fin du XIXe siècle par Henri Becquerel. Elle prend naissance au cœur de certains atomes instables, qui est dû à un excès soit de protons, soit de neutrons, ou encore à un excès des deux. Ils sont dits **radioactifs**. Les noyaux d'atomes instables vont spontanément se transformer en d'autres noyaux pour revenir vers un état plus stable, selon une transformation irréversible est appelée désintégration, en émettant des différents types de rayonnements et aussi des porteurs de l'énergie libérée.

### 1.2 Loi de la désintégration radioactive

Le nombre de noyaux ayant subit une désintégration pendant cet intervalle de temps est *dN* donnés par l'équation suivante:

$$dN = -\lambda N \, dt \tag{1.1}$$

où λ: constante de proportionnalité appelée constante de décroissance.

N : nombre de noyaux présents à l'instant t

Donc Le nombre N(t) de noyaux radioactifs contenus dans un échantillon varie suivant la loi :

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} \tag{1.2}$$

où  $N_0$  le nombre de noyaux initialement présents [6].

### 1.2.1 La demi-vie d'un nucléide

La demi-vie (ou période radioactive  $T_{1/2}$ ) d'un nucléide est l'intervalle de temps au bout duquel la moitié des noyaux initialement présents ont subi une désintégration.

Elle est donnée par la relation suivante:

$$T_{1/2} = (\ln 2)/\lambda$$
 (1.3)

Pour chaque intervalle de temps correspondant à une demi-vie, le nombre de noyaux est divisé par deux (voire la figure 1.1) [7].

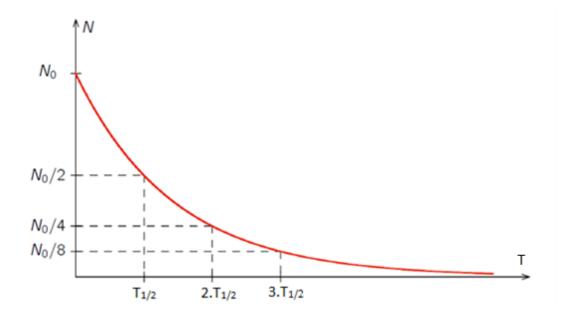


Figure 1.1 – Loi de décroissance radioactive

### 1.2.2 Activité d'un échantillon radioactif

L'activité A à un temps t d'un échantillon contenant N noyaux radioactifs est définie comme étant le nombre de noyaux qui se désintègrent par seconde.

La loi de décroissance de l'activité en fonction du temps est:

$$A(t) = A_{\theta} e^{-\lambda t} \tag{1.4}$$

Dans le système international, l'unité d'activité est le becquerel (Bq). Un Becquerel correspond à une désintégration par seconde et une Curie est égale à  $3.7*10^{10}$  Becquerel [6].

# 1.3 Les différents modes de désintégration:

### **1.3.1** La radioactivité alpha (α):

La radioactivité  $\alpha$  est l'émission de noyaux d'hélium  $^4{}_2$ He par certains noyaux. Les noyaux d'hélium sont aussi appelés particules ou rayons  $\alpha$ . Les noyaux émetteurs  $\alpha$  ont des nombres de masse et de charge élevés (A > 200 ; Z > 82) ; ceux sont des noyaux trop lourds et donc instables (voire la figure 1.2). La radioactivité  $\alpha$  se traduit par une réaction nucléaire représentée par l'équation:

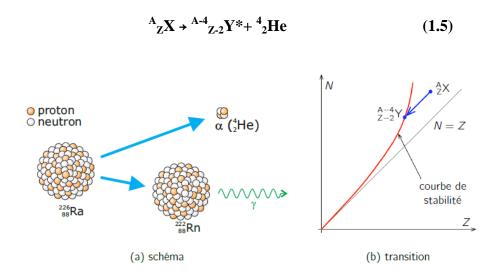


Figure 1.2: Désintégration a d'un noyau lourd

### 1.3.2 Désintégration bêta moins (β') :

Le noyau expulse un électron, c'est-à-dire qu'un neutron se transforme en proton, et l'émission de l'électron s'accompagne de l'émission d'un antineutrino (particule de masse nulle) [8]. La réaction s'écrit :

$$z^{A} X_{N} \rightarrow z_{+1}^{A} Y_{N-1} + e^{-} + \bar{\nu}_{\rho}$$
 (1.6)

# 1.3.3 Désintégration béta plus (β<sup>+</sup>) et capture électronique

Le noyau expulse un positron (particule de charge e<sup>+</sup> et de même masse que l'électron). Un proton du noyau se transforme en neutron et l'émission du positron s'accompagne de l'émission d'un neutrino (particule de masse nulle). La transformation s'écrit :

$$z^{A} X_{N} \rightarrow z_{-1}^{A} Y_{N+1} + e^{+} + \nu_{e}$$
 (1.7)

Le processus de désintégration  $\beta^+$  apparaît presque toujours en compétition avec le processus de capture électronique dans lequel un e- du cortège électronique entourant le noyau (en général, un e<sup>-</sup> proche du noyau). Cette capture, tout comme le processus de désintégration  $\beta^+$ , conduit a la transformation d'un proton du noyau en neutron [8]. La capture s'écrit :

$$z^{A}X_{N} + e^{-} \rightarrow z_{A}^{A}Y_{N+1} + \nu_{e}$$
 (1.8)

### 1.3.4 Désintégration gamma

Au même titre que les atomes, après les désintégrations alpha et béta, les noyaux peuvent se trouver dans un état excité. La désexcitation d'un noyau  ${_A}^z X_N^*$  vers son état fondamentale  ${_A}^z X_N$  se fait de trois manières :

- Par émission gamma (γ), par transition directe si l'énergie du photon γ émis est égale à l'énergie d'excitation du noyau,
- Par cascade de rayonnements  $\gamma$  dont la somme des énergies est égale à l'énergie d'excitation.

$$z^{A}X_{N}^{*} \rightarrow z^{A}X_{N} + \gamma \text{ ou } z^{A}X_{N}^{*} \rightarrow z^{A}X_{N} + \gamma_{1} + \gamma_{2} + ... + \gamma_{n}$$
 (1.9)

• Par conversion interne, c'est-à-dire un transfert direct de l'énergie d'excitation à un électron du cortège électronique [8].

### 1.4 Radioactivité naturelle

L'homme est entouré par la radioactivité. Les radionucléides sont présents dans divers aspects de nos vies comme l'air, l'eau, le sol et les roches qui composent notre planète. Ils sont mêmes au sein de nos corps, dans nos maisons et les matériaux de construction.

Il y a trois types de radioactivités dans l'environnement :

- Radioactivité primordiale.
- Radioactivité cosmo génique.
- Radioactivité artificielle.

#### 1.4.1 La radioactivité primordiale

Ce sont des radionucléides laissés où le monde et l'univers ont été créés. Ils ont généralement une longue durée de vie, avec des demi-vies souvent de l'ordre de centaines de millions d'années (Tableau 1.1) [9,10].

Nucléide	Symbole	Demi-vie (T <sub>1/2</sub> )
	315	
Uranium 235	<sup>235</sup> U	7,04. 10 <sup>8</sup> ans
**	238 <sub>U</sub>	4,47. 10 <sup>9</sup> ans
Uranium 238	""	4,47. 10 ans
Thorium 232	232Th	1,41. 10 <sup>10</sup> ans
Thorium 232	'"	1,41. 10 ans
Potassium 40	<sup>40</sup> K	1,28. 10 <sup>9</sup> ans

Tableau 1.1: Radionucléides primordiaux

### 1.4.2 La radioactivité cosmo-génique

Ces sont des rayonnements proviennent des ressources cosmiques. Ils sont sous des nombreuses formes, à partir des particules lourdes à grande vitesse à photons et muons à haute énergie (Tableau 1.2) [10,11].

Nucléide	Symbole	Demi-vie(T <sub>1/2</sub> )
Carbone 14	<sup>14</sup> C	5730 ans
Hydrogène 3 (tritium)	<sup>3</sup> H	12,3 ans
Thorium 232	<sup>232</sup> Th	1,41. 10 <sup>10</sup> ans
Béryllium 7	<sup>7</sup> Be	53,28 jours

Tableau 1.2 : Radionucléides cosmo génique.

### 1.4.3 La radioactivité artificielle

C'est la radioactivité utilisé par l'homme. Voici quelques produits anthropogénique dont la majorité est issue des essais d'armes et des réacteurs de fission (Tableau 1.3) [11].

Nucléide	Symbole	Demi-vie (T <sub>1/2</sub> )
Tritium	<sup>3</sup> H	12,3 ans
Iode 131	131 <sub>I</sub>	8,04 jours
Iode 129	<sup>129</sup> I	1,57. 10 <sup>7</sup> ans
Césium 137	<sup>137</sup> Cs	30, 17 ans
Strontium 90	<sup>90</sup> Sr	28,78 ans
Technétium 99	<sup>99</sup> Tc	2,11. 10 <sup>5</sup> ans
Plutonium 239	<sup>239</sup> Pu	2,41. 10 <sup>4</sup> ans

Tableau 1.3 : Radionucléides produits par l'homme

#### 1.4.4 Autres formes de radioactivité naturelle

- Radioactivité naturelle dans le sol ; elle varie selon le type de sol, des minéraux présents etc.
- Radioactivité naturelle des océans.
- Radioactivité naturelle du corps humain ; le corps est composé de produits chimiques, et certains d'entre eux sont des radionucléides dont nous ingérons quotidiennement dans notre eau et nourriture [11]

#### 1.5 Chaine des filiations radioactives

Au niveau de ses désintégration, toutes les radio-isotopes se désintègrent en suivant quatre processus d'émissions  $\alpha$ ,  $\beta^-$ ,  $\beta^+$ ,  $\gamma$ . La totalité de la radioactivité appartiennent à 4 familles (aussi appelées séries radioactives) selon leurs nombre de masse A (voir. tableau 1.2). Ainsi toute désintégration d'un noyau membre d'une famille donne naissance à un noyau appartenant nécessairement à cette même famille.

Nom de la famille	Nombre de masse type	Premier terme & $T_{1/2}$	Maillon gazeux	Dernier terme
Thorium	A = 4n	<sup>232</sup> Th 1,405 10 <sup>10</sup> ans	Thoron (Tn)	<sup>208</sup> Pb
Neptunium	A = 4n + 1	$^{237}$ Np 2,14 10 <sup>6</sup> ans	Aucun	<sup>209</sup> Bi
Uranium- Radium	A = 4n + 2	<sup>238</sup> U 4,468 10 <sup>9</sup> ans	Radon (Rn)	<sup>206</sup> Pb
Uranium- actinium	A = 4n + 3	$^{235}\text{U}$ 7,037 $10^8$ ans	Actinon (An)	<sup>207</sup> Pb

Tableau 1.4 Les 3 familles radioactives naturelles et la famille (4n+1) artificielle qui a pu exister après la formation de la terre.

Les 3 chaines naturelles (4n, 4n+2, 4n+3) ont comme dernier terme un isotope stable de la plombe.

On note que la quatrième famille (4n + 1) en fait, ne se trouve pas à l'état naturel dont  $T_{1/2}$  est 2000 fois inférieure à l'âge de la terre. On peut supposer que le Np-237 a été créé lors de la formation de la terre, mais que la famille a totalement disparu. Cette

famille est recrée artificiellement et son dernier terme est le bismuth-209 (Voir tableau 1.4) [12].

Concernant la radioactivité naturelle, il ya quelques radionucléides de demi-vies longues, sans filiation comme le potassium <sup>40</sup>K (voir. tableau 1.5) [12].

Les chaines de désintégration des trois radio-isotopes naturels (<sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U, <sup>232</sup>Th) sont présentées dans les figures (1.3, 1.4, 1.5).

Radionucléide	Abondance	Période	Rayonnement	Noyau
	isotopique (%)	(ans)	produit	Stable produit
<sup>40</sup> K	0,0117	1,26.10 <sup>9</sup>	β <sup>-</sup> , CE β <sup>+</sup>	<sup>40</sup> Ca, <sup>40</sup> Ar
<sup>87</sup> Rb	27,83	4,8.10 <sup>10</sup>	β	<sup>87</sup> Sr
<sup>113</sup> Cd	12,2	9.10 <sup>15</sup>	β-	<sup>113</sup> In
<sup>115</sup> In	95,7	5,1.10 <sup>14</sup>	β	115Sn
<sup>138</sup> La	0,089	$1,1.10^{11}$	CE, β	<sup>138</sup> Ba, <sup>138</sup> Ce
<sup>144</sup> Nd	23,8	2,1.10 <sup>15</sup>	α	<sup>140</sup> Ce
<sup>147</sup> Sm	15,1	1,06.10 <sup>11</sup>	α	<sup>143</sup> Nd
<sup>148</sup> Sm	11,3	8,10 <sup>15</sup>	α	<sup>144</sup> Nd
<sup>152</sup> Gd	0,20	$1,1.10^{14}$	α	<sup>148</sup> Sm
<sup>176</sup> Lu	2,61	3,6.10 <sup>10</sup>	β-	<sup>176</sup> Hf
<sup>174</sup> Hf	0,16	$2,0.10^{15}$	α	<sup>170</sup> Yb
<sup>187</sup> Re	62,60	$4.10^{10}$	β-	<sup>187</sup> Os
<sup>190</sup> Pt	0,013	6.10 <sup>11</sup>	α	<sup>186</sup> Os

Tableau 1.5 : Radionucléides de l'écorce terrestre ne donnant pas de filiations radioactives.

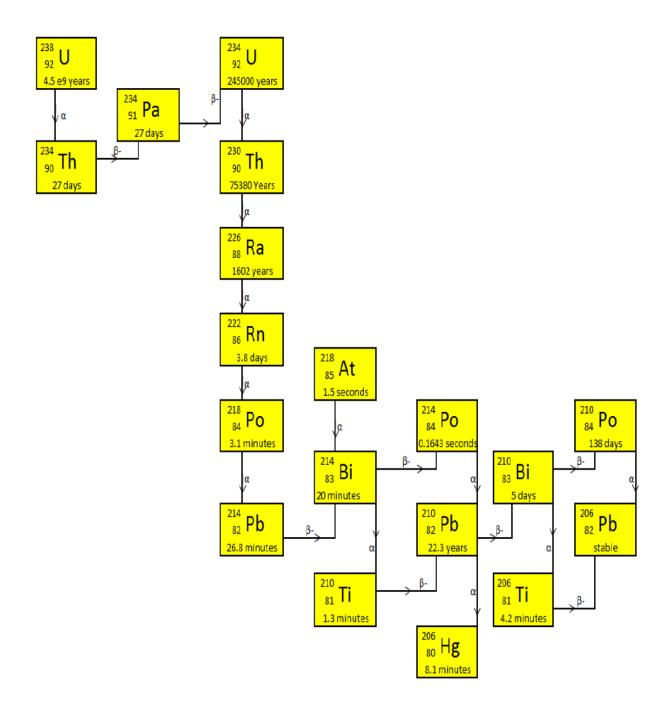


Figure 1.3: Chaine de désintégration de l'Uranium-238.

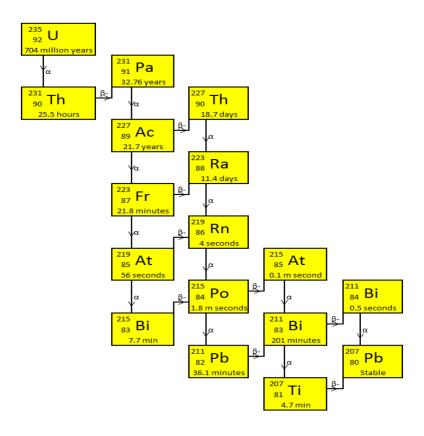


Figure 1.4: Chaine de désintégration de l'Uranium-235.

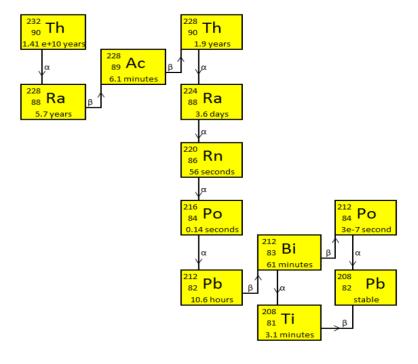


Figure 1.5: Chaine de désintégration de la Thorium-232.

# 1.6 Les processus d'interaction des photons avec la matière

On peut détecte les rayonnements  $\gamma$  via leurs interactions avec la matière en cédant une partie de leur énergie à un ou plusieurs électrons. Le type d'interaction dépend du matériau traverse et de l'énergie du photon incident. Trois processus d'interaction se produite:

- L'effet photoélectrique: Lors d'un processus d'interaction par effet photoélectrique, le photon interagit avec un des électrons du cortège électronique principalement situé sur les couches K, L ou M. On appelle cet électron un photoélectron qui emporte une énergie cinétique E<sub>c</sub> égale à l'énergie du photon incident E=hv moins l'énergie de liaison de l'électron E<sub>l</sub> sur la couche électronique qu'il occupe:  $E_c=E-E_l$ .

  L'effet photoélectrique est prépondérant pour les rayons de basse énergie
  - L'effet photoélectrique est prépondérant pour les rayons de basse énergie (E < 0.2 MeV) [13].
- L'effet Compton: C'est l'interaction d'un photon avec un électron des couches extérieures de l'atome (presque libre). Il s'ensuit la diffusion d'un photon d'énergie E dépendant de l'angle de diffusion:  $E' = E / (1 + E^* a (1 cos(\theta)));$  avec  $a = E / m_0 * c^2$ . L'électron possède ensuite une énergie Ee = E E'.

L'énergie de l'électron est donc nulle pour  $\theta=0$  et maximale pour  $\theta=\pi$  correspondant à l'énergie du front Compton dans le spectre obtenu (voire la figure 1.6) [13].

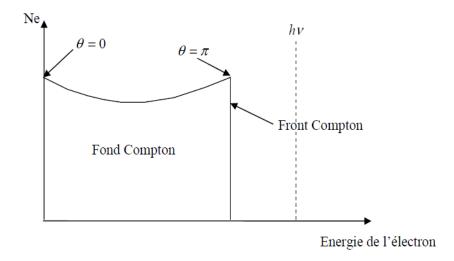


Figure 1.6: Spectre en énergie d'électrons suite à des diffusions Compton d'après (Ne est le nombre d'électrons sur lesquels le photon a réalisé une diffusion Compton)

La probabilité pour un photon de subir une diffusion Compton augmente linéairement avec le nombre Z d'électrons disponibles par atome cible.

• La création de paire: une création d'un positron et d'un électron s'effectue suite à la disparition d'un photon. Grâce à l'instabilité du positron, après plusieurs collisions, il s'annihile avec un électron produisant deux photons d'annihilation de 511 keV à 180° l'un de l'autre. Il s'agit donc d'une réaction à seuil possible uniquement pour des photons incidents d'énergies supérieurs à 1,022 MeV [14].

Les différents types d'interaction et sa prédominance en fonction de l'énergie et du numéro atomique du matériau sont montrés dans les figures 1.7 et 1.8 ci dessous

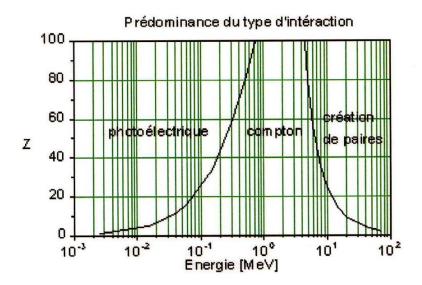


Figure 1.7 : Prédominance du type d'interaction en fonction de l'énergie et du numéro atomique du matériau.

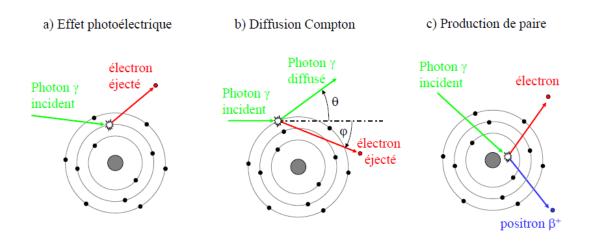


Fig. 1.8: Principales interactions des photons avec la matière

# 1.7 Détecteur de rayonnement gamma

En principe un détecteur de rayonnement ionisant est un système de conversion d'une énergie cédée, lors d'une interaction d'un rayonnement avec la matière du milieu ou par un rayonnement émis par une source radioactive, en une grandeur physique mesurable.

Les phénomènes physiques ayant lieu au niveau du capteur sont connectés à une chaine électronique permettant de transmettre à l'utilisateur des informations relatives au rayonnement détecté [15]. La figure 1.9 donne son schéma synoptique.

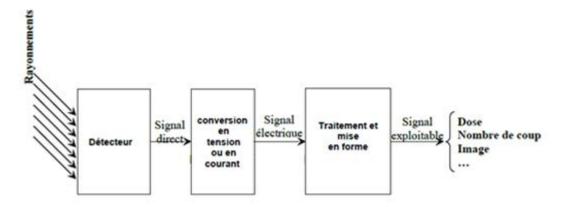


Figure 1.9: la chaine électronique reliée au détecteur

### 1.7.1 Détecteur à scintillation

Il est constitué par un scintillateur suivi d'un photomultiplicateur. L'interaction d'un photon avec le scintillateur crée une ionisation et une excitation des atomes du milieu dont le retour à l'état fondamental entraine l'émission de photons lumineux proportionnelle à l'énergie cédée. Après on fait une multiplication de ces rayonnements lumineux avec le photomultiplicateur (voire la figure 1.10). [16].

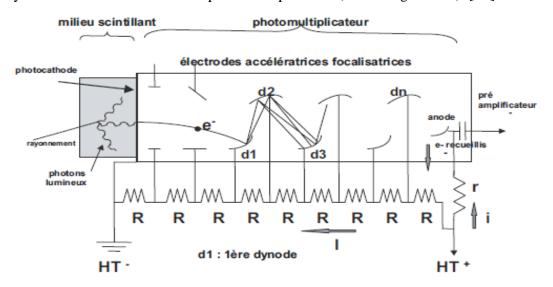


Figure 1.10: structure de détecteur à scintillation

### 1.7.2 Détecteur à gaz

Un détecteur ou un compteur à gaz comprend essentiellement une enceinte contenant un gaz ou un mélange gazeux et deux électrodes métalliques entre lesquelles on applique une différence de potentiel. L'interaction des rayonnements avec le gaz crée des paires d'ions négaton positon [16]. Ces charges nouvellement créées seront collectées par les électrodes, elles sont converties en un signal électrique à partir d'une cellule RC.

#### 1.7.3 Détecteurs semi-conducteurs

#### **Principe**

Les détecteurs à semi-conducteurs sont des détecteurs d'ionisation mais la particule détectée, au lieu de créer des paires ions-électrons dans la zone active, elle crée des paires électrons-trous dans le cristal.

Un photon gamma cède la totalité ou une partie de son énergie à un ou plusieurs électrons. Ces derniers créent par collision des paires électrons-trous dans le semiconducteur. Ces charges sont collectées par un champ électrique. La quantité de charges obtenues est proportionnelle à l'énergie déposée par le photon incident [16], comme ci montre la figure 1.11.

La structure du détecteur est typiquement celle d'une jonction que l'on polarise en inverse de manière à avoir une grande zone de déplétion, qui est la zone active du détecteur, c'est pour cela on a deux types de détecteur à semi-conducteur type N et type P. Pour pouvoir collecter les charges il faut appliquer une haute tension aux bornes du semi-conducteur.[17]

L'avantage des détecteurs semi-conducteurs est d'être compacts et de ne nécessiter qu'environ 3 eV pour créer une paire électron-trou alors qu'il faut environ 30 eV dans une chambre d'ionisation et 300 eV dans cristal de germanate de bismuth. La résolution est donc bien meilleure (les fluctuations statistiques sont plus faibles).

Les détecteurs semi-conducteurs sont aussi rapides et le temps de montée des impulsions est de l'ordre de quelques nanosecondes ce qui peut parfois être utilisé pour faire du temps de vol.

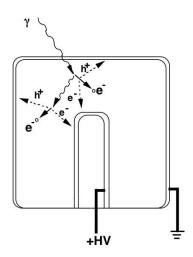


Figure 1.11: Détecteur à semi-conducteur.

Le germanium est utilisé pour détecter les photons  $\gamma$ . Les détecteurs germanium (Z=32) ont une structure de jonction p-n. Le rayonnement est détecté dans la partie intrinsèque.

Ce sont des détecteurs chers, surtout s'ils sont gros ce qui est nécessaire pour arrêter des  $\gamma$  de grande énergie. Il doit fonctionner et être conservés à la température de l'azote liquide (77° K) pour diminuer le bruit de fond car le gap du germanium (0,66 eV à 300 K) est plus faible que celui du silicium (1,2 eV) [16]. Il a une résolution  $\Delta E \approx 2 \text{ keV}$  à 1 MeV et un temps de montée des impulsions  $\approx 0.5 \text{ ms}$  et il est disponible en grand volume Géométrique : planaire, coaxial et puits comme ci montre la figure (1.12). [15]

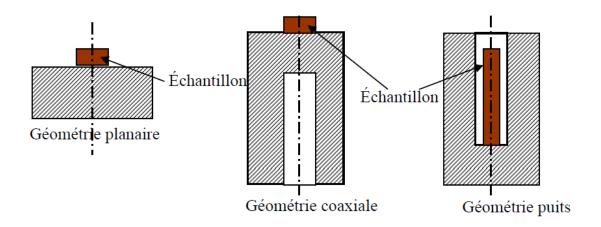


Figure 1.12: Les différentes configurations géométriques des détecteurs germanium.

•

# 1.8 Quelques principes de radioprotection

La radioprotection est l'ensemble des mesures prises pour protéger l'homme, des dangers des rayonnements ionisants tout en permettant leur utilisation.

Les principes de radioprotection à respecter chaque fois la pratique nécessite une manipulation des sources de radiations ionisantes sont les suivants:

### • Justification des pratiques

Aucune pratique impliquant des expositions aux rayonnements ionisants ne doit être adoptée à moins qu'elle n'apporte un avantage aux individus exposés ou à la société qui contrebalance le détriment qu'elle peut induire [18].

#### • Optimisation

Le niveau des expositions, le nombre de personnes exposées et la probabilité de l'exposition doivent être aussi bas que possible compte tenu des facteurs économiques et sociaux [18].

#### • Limitation

Même si une pratique est justifiée et optimisée, les expositions individuelles en fonctionnement normal doivent être limitées afin qu'aucune personne ne soit soumise à des risques inacceptables résultant de l'exposition aux rayonnements ionisants [18].

#### 1.8.1 L'exposition externe au rayonnement ionisé du public

Nous sommes exposés, dans notre quotidien à plusieurs types de rayonnements, dits ionisants des différentes sources qui sont:

#### • une source naturelle terreste:

Les radionucléides naturels d'origine terrestre sont présents à des teneurs diverses dans tous les milieux constitutifs de notre environnement et de l'organisme humain. Ils conduisent à une exposition externe de la population du fait des émissions de rayonnement gamma produites par les chaînes de l'uranium-238 et du thorium-232 et par le potassium 40 présents dans les sols.

#### • Le radon

Certaines zones géographiques présentent un potentiel élevé d'exhalation de radon du fait des caractéristiques géologiques des terrains en place (sous-sol granitique par

exemple). Le radon, descendant de l'uranium, peut s'accumuler dans les habitations et représente une dose importante.

### • Une source naturelle cosmique

Les rayonnements cosmiques sont de deux natures, une composante ionique et une composante neutronique. La valeur moyenne mondiale de dose efficace due à ce type de rayonnement est de 0,38 mSv/an d'après 1'UNSCEAR [2].

#### • Une source artificielle

Comme la radioactivité issue des radiographies médicales ou dentaires, des rejets industriels autorisés, des incidents et accidents de centrales nucléaires, des retombées d'essais d'armes nucléaires dans l'atmosphère, et autres activités nucléaires [18].

Pour l'estimation de cet exposition, on tient compte que les doses efficaces sont les mêmes pour les expositions engagée due aux radionucléides incorporés que n'est pas obtenue par une mesure directe mais est principalement déterminée, avec une surveillance, par des mesures sur les effluents et dans l'environnement, par des données sur l'habitat et par modélisation. Les informations sur les concentrations en radionucléides dans les effluents et dans l'environnement sont utilisées conjointement avec une modélisation radio-écologique (analyse des voies de transfert dans l'environnement, par l'air, par l'eau, par le sol, dans les sédiments, dans les plantes et les animaux vers les humains), afin d'évaluer les doses dues à l'exposition aux rayonnements externes et aux radionucléides incorporés [18].

#### 1.8.2 Unités utilisées en dosimétrie individuelle et radioprotection

La radioprotection est l'ensemble des mesures prises pour protéger les publiques, les employés, et les patients, des dangers des rayonnements ionisants tout en permettant leur utilisation.

La dosimétrie individuelle est la mesure de l'exposition professionnelle du corps humain aux radiations ionisantes.

Les trois principales grandeurs dosimétriques utilisées en dosimétrie individuelle sont la dose absorbée, la dose équivalente et la dose efficace.

#### 1.8.2.1 Dose absorbée (D)

La dose absorbée (D) est l'énergie absorbée par unité de masse :

$$D = d\varepsilon/dm (1.21)$$

Où de est l'énergie moyenne cédée par le rayonnement à la matière, dans un élément de volume, et dm est la masse de la matière contenue dans cet élément de volume.

Dans ce règlement, le terme "dose absorbée" désigne la dose moyenne reçue par un tissu ou un organe.

L'unité de dose absorbée est le **gray** (Gy), un Gy équivaut à un joule par kilogramme:  $1\text{Gy} = 1\text{J.kg}^{-1}$  [19].

#### 1.8.2.2 Dose équivalente (H<sub>T</sub>(d))

La dose équivalente,  $H_T(d)$ , est la dose absorbée par le tissu ou l'organe T, pondérée suivant le type et la qualité du rayonnement R, elle est donnée par la formule :

$$H_{T,R} = W_R D_{T,R}$$
 (1.22)

Où D<sub>T,R</sub> est la moyenne pour le tissu de la dose absorbée du rayonnement R, W<sub>R</sub> est le facteur de pondération radiologique qui tient compte de l'efficacité du rayonnement R. H<sub>T</sub>(d) est l'équivalent de dose à une profondeur d, sous le point de la surface du corps où se trouve le dosimètre.

$$H_T(d) = \Sigma_R W_R D_{T,R}$$
 (1.23)

L'unité de l'équivalent de dose individuel est le **Sievert** (Sv). [19]

#### 1.8.2.3 Dose efficace (E)

La dose efficace (E) est la somme des doses équivalentes pondérées, délivrées aux différents organes et tissus du corps par l'irradiation interne et externe; elle est définie par la formule :

$$E = \Sigma W_T H_T(d) = \Sigma W_T \Sigma W_R D_{T,R}$$
 (1.24)

Où Wrest le facteur de pondération tissulaire pour le tissu ou l'organe T.

L'unité de la dose efficace est le **Sievert** (Sv).

Dans la dosimétrie individuelle, on utilise la dose efficace pour la surveillance des employés [19].

### 1.8.3 Normes internationales de radioprotection

La prise de conscience du danger potentiel d'une exposition excessive aux rayonnements ionisants a amené les autorités à fixer des normes réglementaires pour les limites de doses. Ces limites correspondent à un risque supplémentaire minime par rapport au risque naturel, ce qui le rend donc acceptable.

La Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR) recommande ces limites de doses pour différentes catégories de personnes comme les travailleurs sous rayonnement ou bien le public. On doit se référer à ces normes et recommandations pour plus de détails. On présente par exemple quelques recommandations générales. Pour les travailleurs sous rayonnement, les doses totales maximales sont indiquées dans le tableau 1.6. Pour le publique, ces doses sont indiquées dans le tableau 1.7 [18].

Dose totale		
Maximum pour toute un vie	2 Sv	
Efficace maximale annuelle (corps entier) $E$	20 mSv	
Efficace maximale annuelle (sur la peau 1cm2)	500 mSv	
Efficace maximale annuelle pour le cristallin	150 mSv	
Efficace maximale annuelle pour les extrémités (mains, pieds)	500 mSv	
Efficace maximale annuelle (abdomen femme enceinte)*	1 mSv	

Tableau 1.6 Les doses totales maximales pour les travailleurs sous rayonnement selon CIPR.

Dose totale efficace		
Maximale par an E	1 mSv	
Maximale peau (1cm <sup>2</sup> ) par an	50 mSv	
Maximale cristallin par an	15	

Tableau 1.7 Les doses totales maximales pour le publique selon CIPR.

## 1.9 L'effet biologique de radiation

Certainement, l'homme est entouré par la radioactivité, il est donc exposé en permanence à des rayonnements d'origine naturelle ou artificielle émis lors de la désintégration de radionucléides.

Des modifications au niveau de la matière vivante et cellulaire sont dues aux énergies générées par ces rayonnements où ils induisent des lésions. Ces effets des rayonnements sur l'organisme varient en fonction de plusieurs facteurs: le dose reçue , la source (activité ou intensité de fonctionnement, nature, énergie ...), le mode d'exposition (temps, débit ...) et la cible (tissus ou organes touchés, âge de l'individu ...).

#### 1.9.1 Les effets de radiation ionisée

Il existe deux types d'effet de radiation ionisé :

- Les effets immédiats (ou déterministes)
- Les effets à long terme (effets aléatoires ou stochastiques)

#### 1.9.1.1 Les effets immédiats (ou déterministes)

Les effets immédiats résultent de la mort d'un grand nombre de cellules et sont donc associes aux lésions importantes de la molécule d'ADN [7]. Une forte irradiation par des rayonnements ionisants provoque des effets immédiats sur les organismes vivants comme, par exemple, des brûlures plus ou moins importantes. En fonction de la dose et selon l'organe touché, le délai d'apparition des symptômes varie de quelques heures (nausées, radiodermites) à plusieurs mois. Des effets secondaires peuvent même être observés des années après une irradiation (fibroses, cataracte).

#### 1.9.1.2 La dose seuil des effets déterministes

C'est la dose au laquelle une irradiation donnée entraînait un certain dommage Le tableau 1.8 présente les effets déterministes décrits pour des expositions à des rayonnements  $\gamma$  ou X en fonction de la dose d'irradiation [20].

Effets déterministes recensés pour des expositions à des rayonnements $\gamma$ ou $X$	Dose d'irradiation
Stérilité masculine temporaire	à partir de 0,15 Gy
Diminution temporaire des leucocytes (famille de globules blancs)	de 0,2 à 1 Gy
Nausée, asthénie Modification de la formule sanguine Effet immunodépresseur (risques d'infections) Sous surveillance médicale, le retour à la normale se produit rapidement.	de 1 à 2 Gy
Risque de stérilité féminine	à partir de 2,5 Gy
Stérilité masculine définitive	de 3,5 à 6 Gy
Aplasie (arrêt ou insuffisance du développement d'un tissu ou d'un organe). En l'absence de traitement, au moins la moitié des personnes irradiées meurent et il existe des risques de séquelles	à partir de 4,5 Gy
Atteinte oculaire (survenue possible de cataracte de 1 à 10 ans après l'irradiation)	à partir de 5 Gy
Atteinte gastro-intestinale	6 Gy
Atteinte pulmonaire	8 Gy
Coma, mort cérébrale Mort inévitable	au delà de 10 Gy

Tableau 1.8 Les effets déterministes décrits pour des expositions à des rayonnements γ ou X en fonction de la dose d'irradiation

### 1.9.1.3 Les effets à long terme (effets aléatoires ou stochastiques)

Les expositions à des doses plus ou moins élevées de rayonnements ionisants peuvent avoir des effets à long terme sous la forme de cancers, de leucémies et de des effets génétiques. La probabilité d'apparition de l'effet augmente avec la dose. Le délai d'apparition après l'exposition est de plusieurs années. [10]

### 1.9.2 Effets des rayonnement à l'ADN

Dans la cellule vivante, les facteurs héréditaires sont portés par les chromosomes, constitués d'une double hélice d'ADN (acide désoxyribonucléique), qui se trouvent au niveau du noyau. Ces chromosomes portent le code génétique définissant l'ensemble des caractéristiques innées de l'individu: c'est le centre de commande de la vie biologique.

Les molécules les plus grosses seront logiquement des cibles privilégiées pour le rayonnement, puisqu'elles occupent davantage d'espace, parmi elles, l'ADN. Une petite erreur de code produite par l'ionisation d'un atome se traduira par une modification de la réaction déterminée par ce code, pouvant alors modifier des

caractéristiques importantes de la cellule. L'effet des rayonnements ionisants au niveau des chromosomes se définit sous forme de lésions simple brin ou double brin de la chaîne d'ADN dépendant de la qualité du rayonnement, et en particulier de son énergie. Lorsque les cellules sont exposées à des rayonnements ionisants, des dommages radiochimique peut se produire soit par effet directe ou effet indirecte. [10]

#### 1.9.2.1 Effet directe et indirecte

Lors de l'exposition de la molécule de l'ADN aux radiations, l'action sur les liaisons moléculaires peut être directe, mais aussi indirecte. En effet, les rayonnements provoquent la radiolyse de l'eau  $(H_2O)$ , c'est-à-dire sa décomposition en radicaux libres  $H^\circ$  et  $OH^\circ$ , lesquels sont extrêmement réactifs et oxydants, et peuvent modifier les liaisons chimiques au sein des molécules organiques, de l'ADN. [10]

# **CHAPITRE 2: SPECTROMETRIE GAMMA**

### 2.1 Rayonnement gamma

Les rayons gamma sont des photons, émis par le noyau d'un atome excité après des différentes désintégrations: alpha et bêta (moins et plus). Ils ne sont pas des particules chargées électriquement et moins de masse. Les photons gamma produits ont des énergies quantifiées et bien déterminés qui permet d'identifier le noyau radioactif source. La quantification de photon peut permettre de calculer l'activité de la source.

C'est aspect de la radioactivité qui est à la base du travail présenté ici. L'essentiel de la radioactivité naturelle, en ce qui concerne l'émission gamma, est attribuable au potassium-40 (<sup>40</sup>K), à des radioéléments des séries de l'uranium (filiations <sup>238</sup>U et <sup>235</sup>U) et du thorium (<sup>232</sup>Th).

# 2.2 Spectrométrie gamma

Afin d'*identifier* et *quantifier* les corps radioactifs, alors on dispose un système qui permet de mesurer exactement l'énergie des photons gamma émis et d'en comptabiliser leur nombre pendant une certaine durée. Ce système d'analyse n'est autre que la spectrométrie gamma [21].

La spectrométrie gamma utilisant germanium de haute pureté (GeHP) a été un technique de spectroscopie essentielle et principale, dans presque toutes les mesures de radioactivité dans les laboratoires à travers le monde [22].

#### 2.2.1 Chaine de mesure

La chaîne de mesure est numérique et formée de plusieurs composantes essentielles comme ci montre la figure 2.1 :

- Le détecteur.
- Le préamplificateur.
- L'amplificateur.
- la convertisseur analogique-numérique.
- Analyseur multi-canal.

#### - haute tension

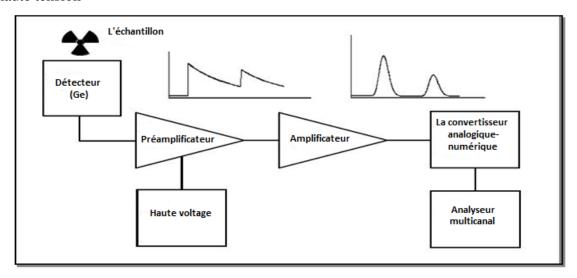


Figure 2.1: Chaine de mesure d'une spectroscopie gamma.

### 2.2.1.1 Le détecteur

La détection des rayons gamma n'est pas un processus direct. La mesure de ces photons dépend de leur processus d'interaction avec la matière ou le milieu qu'ils traversent (voire figure 2.2).

Les détecteurs de photons, ont fait usage de ces paires de charge soit pour détecter le passage d'un photon ou pour déterminer son énergie en mesurant la quantité de charge produite [23].

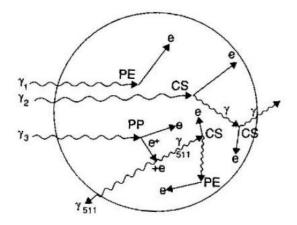


Figure 2.2: Différentes processus d'interaction lors de la détection des rayonnements gamma.

Dans le cas d'un détecteur à semi-conducteur, une collection de charges est réalisée en appliquant un champ électrique intense au détecteur à l'aide des électrodes. Sous l'effet de ce champ les électrons et les trous sont séparés et migrent vers l'anode et la cathode comme indiqué dans la figure 2.3 ci-dessous. Une impulsion électrique d'amplitude proportionnelle à l'énergie des électrons primaires se crée.

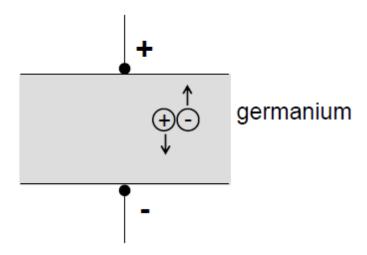


Figure 2.3: La collection de charge dans un détecteur germanium.

Dans notre projet, nous avons utilisé au laboratoire de CLEA deux détecteurs coaxiaux semi-conducteurs en germanium à haute pureté (GeHP) d'efficacité relative 40% et 50% respectivement, monté sur un cryostat refroidi à la température de l'azote liquide de 77°K, à fin de réduire le bruit de fond thermique.

#### 2.2.1.2 Le préamplificateur

Le préamplificateur convertit la charge électrique collectée en signal de tension; Minimise les bruits électroniques et capte des signaux maximaux indiqués par le détecteur.

L'amplitude des impulsions de préamplificateur doit être proportionnelle à la quantité de charges collectées dans le détecteur. Il sert d'interface entre le détecteur et l'amplificateur [23].

#### 2.2.1.3 L'amplificateur

L'amplificateur augmente l'amplitude d'impulsion et convertit le signal de la forme de décharge à forme des impulsions. Les amplificateurs sont fournis avec une sortie

unipolaire et bipolaire, le rapport optimal signal sur bruit est obtenu en sélectionnant la sortie unipolaire (voire la figure 2.4) [23].

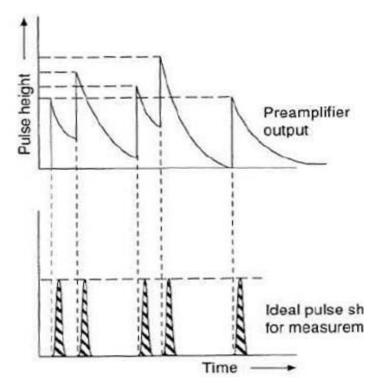


Figure 2.4: L'amplificateur

### **2.2.1.4** Convertisseur analogique-numérique (CAD)

A la sortie de l'amplificateur on a un signal gaussienne, le convertisseur transforme l'amplitude du signal à une quantité numérique qui est proportionnelle a l'énergie déposée dans le cristal [23].

### 2.2.1.5 L'analyseur multicanaux

Il collecte, classe et enregistre les informations dans différents canaux : chaque canal correspond à une énergie.

Cela permet d'obtenir un histogramme en temps réel dans lequel l'énergie déposée dans le cristal, est reliée au numéro de canal et le nombre de coup dans un canal donné, et elle est proportionnelle aux nombres de photons ayant déposé la même énergie dans le cristal comme indiqué dans la figure 2.5 [23].



Figure 2.5: Histogrammes donnant le nombre de photons détectés en fonction de nombre de canal.

#### 2.2.1.6 Haute tension

Afin de percevoir la charge formée dans le détecteur, une tension de polarisation doit être placée à travers le détecteur. La tension de polarisation optimale est généralement spécifiée par le fabricant du détecteur, et peut atteindre 5000 volts pour les grands détecteurs. Cette tension de polarisation doit être stable dans le temps et ne devrait pas montrer des fluctuations [23].

### 2.3 Les spectres: lecture des résultats

Finalement, après la recueillie de tous les résultats à partir de l'analyseur multi-canal, et leur montrer à l'écran dans forme de spectre de pics: histogramme du nombre de photons détectés en fonction de leur énergie, où chaque pic correspond à un rayonnement gamma issu de la désexcitation des noyaux instables ou atome radioactif, c'est-à-dire chaque pic représente un radio-isotope, présent dans l'échantillon et aussi sa surface sera proportionnelle à l'activité de l'élément. Ce spectre est caractérisé par un fond continu (bruit de fond) décroissant avec l'énergie et par la présence de plusieurs pics [22].

Certains logiciels a un automatique qui identifiera automatiquement l'élément, puis calculera son activité et l'incertitude sur la base de la bibliothèque (voir figure 2.6). Tous les résultats seront finalement résumés et cotés sur un rapport (voir annexe A).

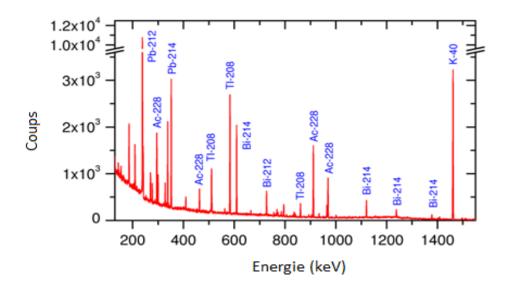


Figure 2.6: Un spectre gamma obtenu par un détecteur semi-conducteur.

# 2.4 Les pics

Par la position des pics (ou énergie des photons), on entreprend l'analyse qualitative du spectre. Par la surface des pics (ou nombre d'impulsions), on entreprend l'analyse quantitative du spectre : on détermine pour chaque radioélément (présent dans l'échantillon) son activité en Becquerels ramenée à la masse ou au volume de l'échantillon. (Bq/kg ou Bq/l). En général, la forme du pic est parfaitement gaussienne.

# 2.5 La résolution en énergie

On définit la résolution en énergie: la mesure de la capacité d'un détecteur à séparer les raies dans le spectre. Idéalement, la forme du pic est parfaitement gaussienne, ainsi La résolution FWHM,  $\delta E$  (exprimée en keV), est la pleine largeur du pic mesurée à mi-hauteur, comme ci montre la figure 2.7.

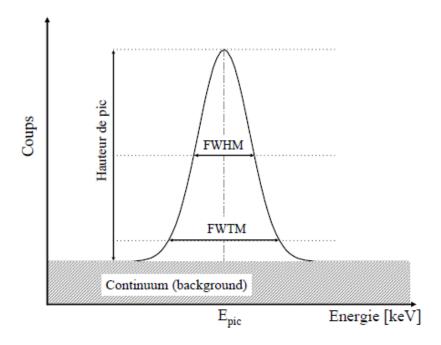


Fig. 2.7: Définition de la résolution pour un pic parfaitement gaussien.

Notons que la résolution δE varie avec l'énergie des photons gamma.

La résolution relative R (exprimée en %) comme étant le rapport de la résolution FWHM à l'énergie du pic est donné par:

$$R(E) = \delta E/E \tag{2.1}$$

Avec E: l'énergie du pic

Dans le cas de détecteur semi-conducteurs, quelques eV suffisent à créer une paire électron-trou, ce qui est environ moins qu'un gaz, et qu'avec un détecteur sodium iodé (NaI), cela se traduit par une meilleure résolution en énergie. Une comparaison entre les résolutions des deux détecteurs (NaI) et (GeHP) présenté dans la figure (2.8).

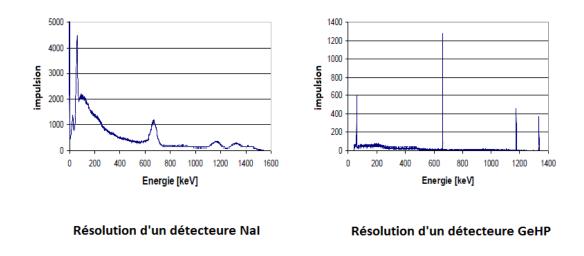


Figure 2.8: Comparaison entre les résolutions des deux détecteurs NaI et GeHP

# 2.6 La résolution en temps

C'est l'intervalle de temps minimal séparant deux interactions. Lorsque la résolution du temps est bonne, on obtient des résultats plus exacts et on évite les irrégularités

# 2.7 La durée de comptage

La désintégration d'un noyau par l'émission d'un photon gamma est un phénomène spontané. Alors il est impossible de dire exactement à quel moment un noyau va se désintégrer. C'est qui impose de placer l'échantillon dans le détecteur pour un temps suffisant d'obtenir des pics de bonnes statistiques qui seront clairement identifiés. Notons que si l'échantillon a une concentration d'activité ultérieurement supérieure, le temps de comptage est moins nécessaire. Et aussi si l'efficacité d'un détecteur est importante, il requiert plus faible temps de comptage.

# **CHAPITRE 3: METHODOLOGIE**

### 3.1 Sites d'échantillonnage

Pour effectuer l'échantillonnage, nous avons utilisé une copilote système de positionnement global (GPS), pour préciser les coordonnés des sites d'échantillonnage pris, dans le but que les échantillons collectés soient plus représentatifs.

# 3.2 La géographie de Baalbek-El hermel

La province Baalbek-El hermel est l'une des huit provinces libanaises. Une zone de 3009 kilomètres carrés. Cette province occupe les terres situées entre les sommets du nord des chaînes occidentales des montagnes du Liban et l'Est, dont la terre est principalement du climat semi-désertique, stérile appelé Jourroud Baalbek, sauf les rives de la rivière Litani et le fleuve Oronte, où la majorité des centres de population sont stationnés dans le système judiciaire. Bordé par le Nord et l'Est de la Syrie, et l'Ouest la province de Akkar et le district de Danieh, Bcharri, Batroun, Jbeil et Kesserwan, et du sud, de la frontière avec la Syrie et l'ouest de la Bekaa (voir figure 3.1) [24].



Figure 3.1: La carte du Liban avec la carte de Baalbek-el hermel colorée rouge.

# 3.3 Stratégie de l'échantillonnage.

Les échantillons du sol ont été prélevés dans les différentes couches de sol jusqu'à 15 cm de profondeur, à 30 zones non cultivées dans la province du Baalbeck-El Hermel. Les paramètres de la longitude, de la latitude et de l'altitude des endroits ont été obtenus sur la base du système de positionnement global (G.P.S). Les échantillons prélevés inclus des sables de sol de la vallée alluviales, sables de terrain en vrac, incultivé, et les zones couvertes d'herbe [25].

Après avoir choisi la zone d'échantillonnage, les herbes sont éliminées en utilisant une paire de ciseaux. Ensuite, les sols sont recueillis en utilisant un moule avec une surface (25x28 cm<sup>2</sup>) et une hauteur optionnel selon le profile choisi (voir figure3.2 (a), (b)).



Figure 3.2a: Choix de la zone d'échantillonnage.

La plupart de ces échantillons du sol ont été collectés à partir de la profondeur (0-3 cm) à une surface afin d'étudier la composition de radionucléide naturel et artificiel. D'autres échantillons sont prélevés à partir de 3 couches dans le même endroit (0-3, 3-8, 8-15 cm) qui est appelé profile de profondeur (voire figure 3.2b).



Figure 3.2b: L'utilisation de moule lors de l'échantillonnage.

Le but de cette extraction est d'étudier la concentration de <sup>137</sup>Cs et sa variation en fonction de la profondeur depuis que le césium est devenu dans la portée de fabrication de radio-isotope par l'homme avec une demi-vie de 30,5 ans, et la plupart de l'accident de réacteur nucléaire et les essais nucléaire des armés en 1960. Et puisqu'il n'y a pas des activités nucléaires au Liban, il est prévu que ce radionucléide existe à cause de l'accident de Tchernobyl en 1986 [26].

Chaque échantillon prélevé est mis dans un sac en plastique, sur lequel on a inscrit toutes les informations nécessaires (nom de l'échantillon, la date de prélèvement et les coordonnées des sites). Les coordonnées sont enregistrées en utilisant l'application "Smartphone" (Copilote) et la zone visitée sera indiqué sur la carte pour démontrer que l'échantillon y avait été recueilli. Quarante et deux échantillons ont été prélevés dans 30 endroits comme on indique sur la carte (voir figure 3.3).

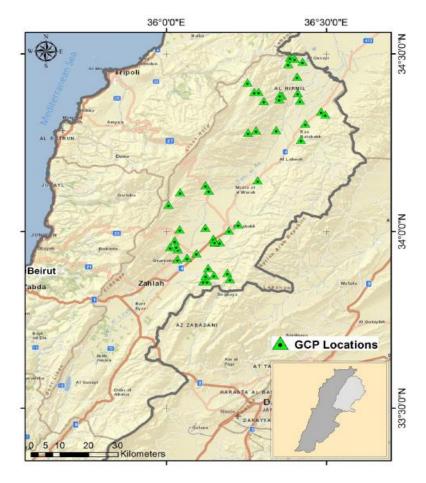


Figure 3.3: La carte de l'échantillonnage effectué dans ce travail.

# 3.4 Préparation des échantillons

Les échantillons sont transportés au laboratoire de Spectroscopie Gamma au CLEA pour la préparation avant mesure. Ils subirent plusieurs processus pendant la préparation.

## 3.4.1 Pesage des échantillons initiaux prélevés :

Pour calculer plus tard la concentration en activité (Bq/kg), il faut peser chaque échantillon avant préparation pour obtenir sa masse totale (kg).

## 3.4.2 Broyage et élimination des impuretés

L'échantillon mesurée doit être homogène, donc broyés et tamisés à fin de d'éliminer les agrégats et les fines herbes (voire figure 3.4 a,b).

Des échantillons de sol lors de la préparation



Figure 3.4a: Broyage et tamisage d'un échantillon.



Tamisage d'un échantillon dans un récipient en polyéthylène (500 ml)

Figure 3.4b: Broyage et tamisage d'un échantillon.

## 3.4.3 Géométrie adoptée pour les échantillons

A ce stade, comme les sols sont des matériaux en poudre qui ne possèdent pas une forme géométrique définie, c'est pour cela on doit les mettre dans des récipients en polyéthylène chacun de 500 ml comme volume (voir figure 3.5). Cette géométrie est imposée par la géométrie avec laquelle on a effectué l'étalonnage en efficacité de notre détecteur.



Figure 3.5: L'échantillon est mis dans le récipient

## 3.4.4 Pesage des échantillons préparés

Avant de remplir la boite, on doit déterminer sa masse. Après avoir rempli la boite avec l'échantillon, la mesure de la masse brute est effectué en calculant la différence entre la masse totale et la masse de la boite vide déjà pesée.

Le calcul de la concentration de l'activité du sol en Bq/kg exige que le l'échantillon sera totalement sec, donc une quantité de sol tamisé est pondéré humide et placé dans un four à 85°C pendant 24 heures, puis pesée à nouveau, afin de calculer le rapport sec / humide, ensuite la masse brute sec (voir figure 3.6).



Figure 3.6: Séchage quelque grams de l'échantillon

### 3.4.5 Hermetisation des récipients

Une fois la pesée est terminée on inscrit sur le récipient l'identification de l'échantillon (code spécifique au laboratoire). Enfin, on ferme bien le récipient.

Cette étape est nécessaire à l'établissement d'un équilibre radioactif qui a pour condition la présence de tous les éléments dans le milieu, ensuite l'établissement d'équilibre entre le radium et ses filles.

## 3.5 Mesure de l'échantillon

Après la préparation des échantillons dans le récipient de polyéthylène, l'échantillon est disposé dans le détecteur de germanium de haute pureté pour mesurer les rayonnements gamma émis par l'échantillon (voir la figure 3.7). Le spectre Gamma est collecté puis analysé déconnecté (offline). Les concentrations d'activité ont été calculées (voir paragraphe 3.12). Les échantillons sont mesurés dans les mêmes conditions de température et d'humidité: à une température doit être comprise entre 18 °C et 22 °C et une humidité entre 40% et 75%. La mesure a été effectuée en utilisant une méthode standard (IEC 1452: 1995) [27].



Figure 3.7: Lecture de l'échantillon dans le détecteur HPGe (détecteur vide sur la droite et avec l'échantillon sur la gauche)

## 3.6 Description de chaine de mesure

La mesure d'échantillons est effectuée dans le laboratoire de spectroscopie gamma à CLEA. Le laboratoire de spectroscopie gamma est accrédité par le Système d'accréditation Hellénique ESYD, certificat n ° 788 en date du 20 Janvier 2012, sur la base / IEC ISO 17025 pour les laboratoires d'analyse et de calibration.

Les deux ensembles de systèmes de spectrométrie gamma de Canberra ont été équipé de deux détecteurs (GeHP) de type P germanium de haute pureté coaxial, B et C, avec une efficacité relative de 40% et 50% respectivement et de haute résolution (2,0 keV à 1332 keV) pour les deux, reliés à l'électronique standard et les spectres ont été accumulés dans 8 K analyseur multicanaux (voire figure 3.8). Les détecteurs sont logés dans un 10 cm d'épaisseur de blindage en plomb afin de réduire le bruit de fond et par une couche de cuivre de 0,5 cm d'atténuer les rayons X émis par le blindage de plomb. Les spectres ont été analysés hors ligne (offline) en utilisant le logiciel Genie 2000 à partir de Canberra version V3.1a, y compris la recherche de pic, l'identification des nucléides, et des modules de calcul activité et d'incertitude [5].



Figure 3.8: Un détecteur GeHP utilisé dans le laboratoire de CLEA.

## 3.7 Assurance qualité

Avant de pouvoir effectuer les analyses qualitative et quantitative d'un échantillon: détermination des radionucléides présents dans l'échantillon et du spectre et de l'activité de chacun de ces radionucléides, la chaine doit être étalonnée en énergie et en efficacité. Cela permet d'avoir des valeurs exactes pour les différentes mesures notamment celles de l'activité.

Cet étalonnage comprend quatre étapes principales :

- L'étalonnage en énergie : relation entre numéro de canal et énergie du photon.
- L'étalonnage en **efficacité**: relation entre nombre d'impulsions (ou surface du pic) et activité du radio-isotope.
- Le contrôle qualité.
- Test de **performance**.

## 3.7.1 L'étalonnage en énergie

Après amplification, le signal est stocké dans l'analyseur multicanaux de 8 K canaux. Ainsi, l'étalonnage en énergie est nécessaire d'établir une relation entre les canaux et les énergies, et de corriger le décalage éventuel dans l'énergie (voir figure 3.9) [17]. Cette relation est en principe linéaire de l'énergie en fonction des canales [28]:

$$E = a.\gamma + b (3.1)$$

Où E: l'énergie en keV;

χ: le numéro de canal d'accumulation maximum de coups;

a : le coefficient directeur de la courbe ou gain en keV/canal;

b: l'énergie du premier canal.

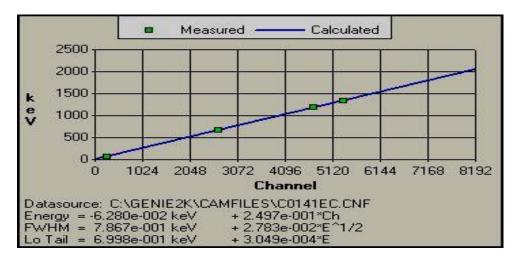


Figure 3.9: Courbe d'étalonnage en énergie dans le système de programme Genie 2000.

Il est réalisé en mesurant le spectre d'une source de multi-gamma standard de sol (voir figure 3.10) avec un code **EG-ML** fourni par la compagnie **Ecker & Ziegler** certifiée (voire l'annexe B), pour un temps de 700 sec, contenant des radionucléides mixtes avec des lignes de gamma bien connus qui couvrent les gammes basses, moyennes et hautes énergies du spectre, pas de soins pour la matrice, la taille ou le conteneur.



Figure 3.10: Source multi-gamma standard certifiée

Nucléide	Energie de rayonnement	Demi-vie	Rapport de
	gamma (keV)		branchement
			(%)
Am-241	60	432.17 ans	36.0
Cd-109	88	462.6 jour	3.63
Co-57	122	271.79 jour	85.6
Te-123m	159	119.7 jour	84.0
Cr-51	320	27.706 jour	9.86
Sn-113	392	115.09 jour	64.9
Sr-85	514	64.84 jour	98.4
Cs-137	662	30.17 ans	85.1
Y-88	898	106.63 jour	94.0
Co-60	1173	5.27 ans	99.86
Co-60	1333	5.27 ans	99.98
Y-88	1386	106.63 jour	99.4

Tableau 3.1: Les radionucléides présent à la source standard multi-gamma.

A chaque instant que l'étalonnage d'énergie est fait, la résolution en énergie et la forme de pic sont testés et ceux-ci sont tracés par rapport à l'énergie dans le même graphique (voir figure 3.11).

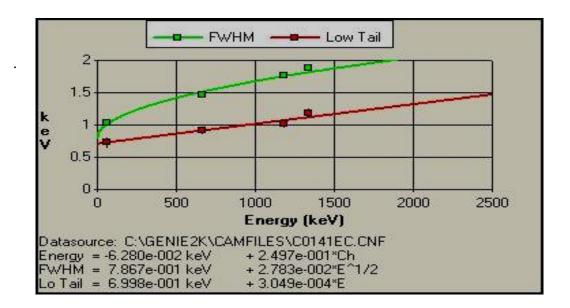


Figure 3.11: courbe d'étalonnage en énergie dans le système de programme Genie 2000.

## 3.7.2 Etalonnage en efficacité

En physique expérimental, le terme «efficacité» est défini comme étant le rapport entre la réponse de l'instrument et la valeur réelle de la grandeur physique qui est mesurée [30]. En spectroscopie gamma de la quantité physique est le taux d'émission de photons avec une énergie spécifique, tandis que la quantité mesurée est le taux de comptage. L'efficacité totale d'un pic d'énergie pour une source de point est définie comme suit:

$$\varepsilon(E) = \frac{n(E)}{R(E)} \tag{3.2}$$

Avec ε(E): l'efficacité à l'énergie égale à E;

n(E): nombre de coups comptés par pic correspond à l'énergie E;

R(E):nombre de photon d'énergie E émis par la source.

Ce qui traduit que l'étalonnage en efficacité a pour objectif de déterminer la relation qui existe entre le nombre de coups détectés dans un pic (surface nette) et le nombre de photons émis par la source, autrement dit son activité.

Pour un détecteur donné, L'efficacité n'est pas constant, elle dépend de:

- ❖ La géométrie source-détecteur;.
- ❖ Auto-absorption et d'atténuation dans l'échantillon.;
- La densité et la composition de l'échantillon mesuré;
- **\L**e coefficient correction de sommation;
- L'électronique utilisée.

En conclusion, nous nous rendons compte que l'efficacité de chaque échantillon varie suivant sa matrice et sa densité, donc l'étalonnage en efficacité doit être fait pour chaque matrice et densité.

Cet étalonnage est réalisé en mesurant une source multi-gamma standard contenant plusieurs radionucléides d'activité connue et certifiée ayant une matrice et densité similaires aux échantillons à analyser [31].

L'efficacité pour une énergie donnée se calcule ensuite simplement par l'équation 3.3 [32]:

$$\mathcal{E}(E) = \frac{S}{T_1 \times p(E) \times A \times Kw}$$
 (3.3)

Où S: est la surface nette du pic d'énergie donnée (nombre d'impulsions)

A : est l'activité du radionucléide au moment de comptage en Bq;

P(E): est probabilité d'émission gamma de la raie d'énergie donnée;

 $T_1$ : est le temps de comptage.

K<sub>w</sub> c'est le facteur de correction de décroissance

Avec: 
$$K_W = e^{\frac{-\ln{(2)}T_W}{T_{1/2}}}$$
 (3.4)

T<sub>w</sub>: le temps de décroissance de la source d'étalonnage (le temps écoulé entre le début d'acquisition et le temps à laquelle l'activité de la source d'étalonnage est rapporté).

T<sub>1/2</sub>: est la demi-vie de radionucléide de l'étalonnage.

L'efficacité est calculée à différentes lignes de gamma présent dans la source multigamma standard et une courbe d'efficacité est établie pour une géométrie donnée (voir figure 3.12).

Comme conséquence, des courbes d'efficacité pour des différentes matrices et géométries des échantillons, devrait tracée après le calcul en utilisant le logiciel. L'étalonnage doit être effectué pour chaque échantillon, de façons que chaque courbe est utilisée et choisie pour l'échantillon ayant la même matrice, quantité, la forme géométrique et la densité

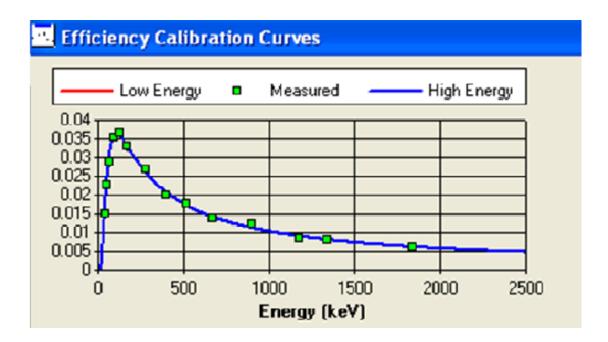


Figure 3.12: courbe d'étalonnage d'efficacité.

### 3.7.3 Control qualité

Afin de vérifier l'exactitude et la précision des résultats obtenus à partir du système de spectromètre gamma, une procédure de contrôle de la qualité est appliqué, se base sur la mesure et l'analyse d'un étalon matériau référence standard de matrice similaire aux échantillons à analyser, et dans les mêmes conditions d'analyse comme échantillon de contrôle. Cette étape est effectuée chaque semaine. On évite tout problème inattendu s'il y a eu.

L'exactitude et la précision des résultats sont évaluées en mesurant les paramètres pertinents tels que la concentration de l'activité (Bq/kg) du radionucléide et les comptes par seconde et la comparant aux valeurs de l'étalon

Pour établir la carte de control, les données enregistrées pour la concentration de l'activité et les comptes durant toute l'année précédente sont pris comme base pour le calcul de la ligne centrale correspondant à la valeur moyenne comme cible, et l'écart-type  $\delta$  pour cette carte de contrôle. Les résultats sont comparés au résultat certifié et des cartes de contrôle sont utilisées pour l'évaluation (Voir la figure 3.13 a, b et c).

Plus tard, un niveau inférieur d'avertissement LWL (Lower Warning Level) et un Haute Niveau d'avertissement UWL (Upper Warning Level) seront établi qui est égal à X -2 $\sigma$  et X + 2 $\sigma$  respectivement où  $\sigma$  est l'écart type.

Puis un niveau inferieure d'action LAL ( Lower Action Level ) et Niveau supérieur d'action UAL ( Upper Action Level ) seront dessiné au sort qui sont égaux à  $X-3\sigma$  et  $X+3\sigma$ .

Si 2 valeurs consécutives dépassent les  $2\sigma$ , Les résultats atteignent le niveau d'avertissement et une correction sera prise sur tout le système ou sur un élément de système après avoir designer la cause.

Si une valeur dépasse la 3 $\sigma$ , les résultats atteignent le niveau d'action et une nonconformité seront enregistrés, les résultats seront inacceptables. Le même résultat aussi lorsqu'on a sept points continuellement croissante ou décroissante.

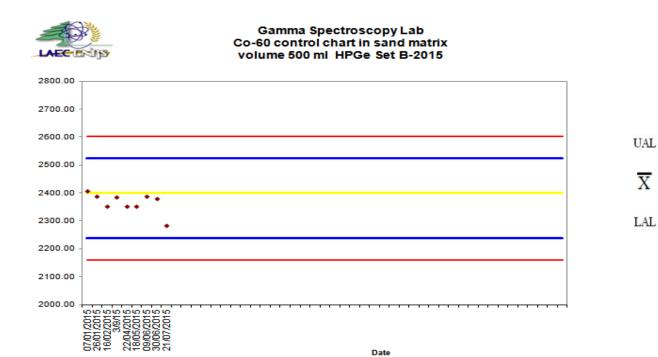


Figure 3.13a: Carte de contrôle de qualité effectué sur le <sup>60</sup>Co dans la matrice de sable multi-gamma

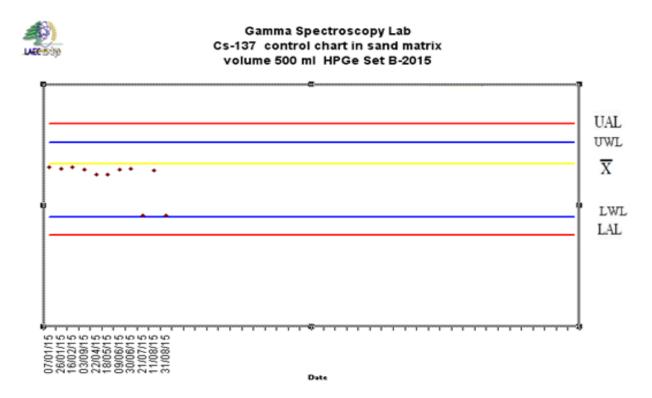


Figure 3.13b: Carte de contrôle de qualité effectué sur le <sup>137</sup>Cs dans la matrice de sable multi-gamma



#### Gamma Spectroscopy Lab Am-241 control control chart in sand matrix 500 ml volume HPGe Set B-2015



Figure 3.13c: Carte de contrôle de qualité effectué sur le <sup>241</sup>Am dans la matrice de sable multi-gamma

## 3.7.4 Test de performance

Deux paramètres sont pertinents pour évaluer et contrôler la performance et la stabilité de spectromètres gamma d'un détecteur GeHP en fonction du temps: la résolution de l'énergie et l'efficacité de pic d'énergie (ε). Ceux sont contrôlés à basse et à haute énergie lors du comptage d'une source ponctuelle comme Eu-152 [27]. Ce test est effectué chaque semaine, aux deux modes: connecté (pile up rejecter ON) et déconnecté (pile up rejecter OFF), la mesure adopté est celui à la mode déconnecté afin d'éviter les bruits.

Après la collecte de données, les cartes de contrôle à la fois pour la résolution et l'efficacité à basse et à haute énergie sont établies pour contrôler la performance du détecteur en fonction du temps (voire les figures 3.14a, b).

Les données enregistrées pour la résolution et l'efficacité durant toute l'année précédente sont pris comme base pour le calcul de la ligne centrale correspondant à la valeur moyenne comme cible, et l'écart-type  $\delta$  pour la carte de contrôle.

Les niveaux d'avertissement- supérieure et inferieure sont définis comme la moyenne  $\pm 2\delta$ , aussi les niveaux d'action supérieure et inférieure sont définis comme la moyenne  $\pm 3\delta$ . Une non-conformité sera enregistrée et les résultats seront inacceptables alors une correction faudra prise sur le détecteur si la distribution des résultats sur le tableau de commande suit l'une des situations ci-dessous cités:

- Un point sur  $3\delta$ .
- Deux des trois points tombent sur  $2 \delta$ .
- Sept points en constante augmentation.
- Sept points continuellement décroissants.

En cas de résultats non conformes, aucune mesure de l'échantillon, ou de mesure de contrôle de la qualité ne se fait à moins que le problème soit résolu.

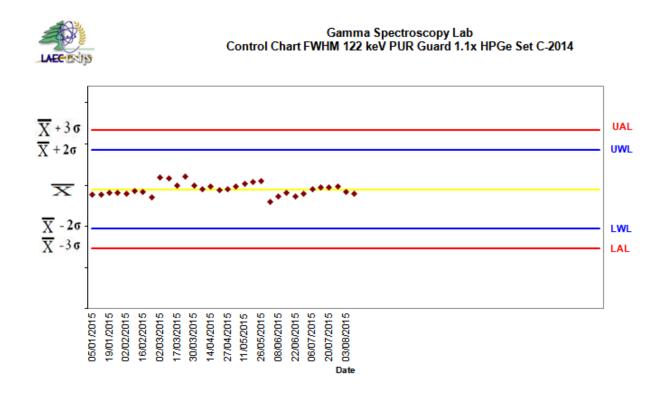


Figure 3.14a: Carte de contrôle de résolution à basse énergie effectué sur la source ponctuelle <sup>152</sup>Eu

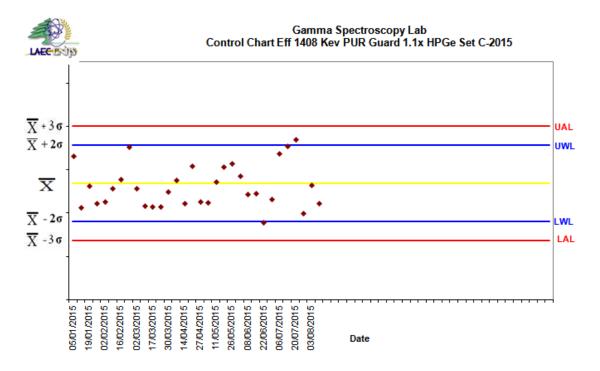


Figure 3.14b: Carte de contrôle d'efficacité à haute énergie effectué sur la source ponctuelle <sup>152</sup>Eu

# 3.8 Calcul de surface de pic

Lors de la mesure d'échantillons par le détecteur GeHP, nous obtiendrons des pics gaussiens où certains représentent la preuve de l'existence d'un radioélément [32].

Ainsi la détermination de l'aire du pic gaussien est très importante afin de calculer la concentration d'activité du radio-isotope à étudier.

En théorie, la surface de pic net est calculée selon l'équation suivante:

$$S_n = S_g - S_b \tag{3.4}$$

Avec:

S<sub>n</sub>: Surface net de pic

S<sub>g</sub>: Surface net de pic gaussien étudiée

S<sub>b</sub>: Surface de la bruit de fond entre la commence de pic gaussienne et sa fini.

Théoriquement, si l'on considère qu'un pic gaussien commence au point **a** et fini au point **b** (voir figure 3.15), la surface du pic est calculée comme suit:

Surface de pic = 
$$\int_{a}^{b} f(n)dn$$
 (3.5)

Avec: n est l'énergie

## f (n) est le nombre de comptes

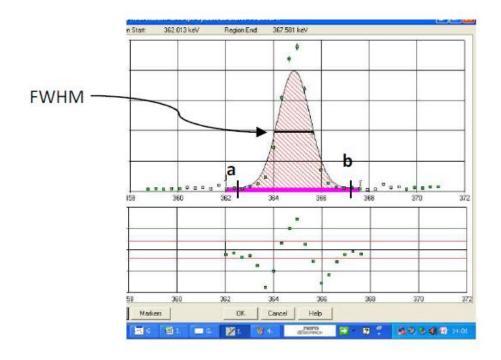


Figure 3.15: la surface de pic gaussienne.

Selon le programme Genie 2000, nous utilisons la bibliothèque (Gamma-M) méthode pour calculer la surface du pic qui est donnée par l'équation suivante [32]:

Surface de pic = 
$$h Z \sqrt{\pi}$$
 (3.6)

Où: h est la hauteur du pic

Z est une mesure de la largeur de pic ( $Z^2 = 2\sigma^2$ , où  $\sigma$  est la largeur gaussienne)

La largeur gaussienne s est approximativement égale à  $\frac{FWHM}{2.0355}$  où est la largeur du pic à mi-hauteur, après soustraction du continuum (voir figure 3.15).

## 3.9 L'incertitude de la surface de pic

La désintégration radioactive est un phénomène aléatoire dans le temps, qui obéit à la loi de Poisson. Par conséquent, les mesures du nombre d'évènements détectés ne sont jamais exactes, mais représentent des valeurs moyennes avec des incertitudes qui s'améliorent pour les mesures de longue durée. Ainsi, le calcul d'incertitude est nécessaire pour chaque mesure.

L'incertitude de la surface du pic est calculée comme suit:

N = (G-B)-I (3.7)  $B = (N/2n) (B_1+B_2)$ 

 $I = (T_s/T_b)$ . Ib

Où:

N = nombre de canaux dans le région d'intérêt (ROI);

G = le compte net dans le région d'intérêt (ROI);

I<sub>b</sub> = la surface du pic net dans les spectres de la matière de référence;

T<sub>s</sub> = le temps réel dans le spectre de l'échantillon en secondes;

 $T_b$  = le temps réel du spectre de bruit de fond en secondes;

n = nombre de canaux contenant de chaque côté (actuellement le même);

 $B_1$  = Somme des coups dans la région contenant à la gauche du pic;

 $B_2$  = Somme des coups dans la région contenant à droite du pic.

 $I_b = G_b - B_b$ 

 $B_b = (N/2n)(B_{1b} + B_{2b})$ 

Puisque G est une distribution de Poisson, l'incertitude de la surface du pic net peut être calculée selon l'équation 3.8 ci-dessous [33].

$$\sigma_{N} = \sqrt{(\sigma_{G}^{2} + \sigma_{B}^{2} + \sigma_{12}^{2})}$$
 (3.8)

Avec

$$\sigma_B^2 = (N/2n)^2 (B1+B2)$$
 (3.9)

$$\sigma_{\rm I}^{\ 2} = ({\rm Ts/Tb}) \, \sigma {\rm Ib}^{\ 2}$$
 (3.10)

$$\sigma_{\text{Ib}}^2 = \text{Gb} + (\text{N}/2\text{n})2 \text{ (B1b+B2b)}$$
 (3.11)

## 3.10 L'effet zéro: bruit de fond

Une mesure de l'effet zéro (autrement dit une mesure à vide, sans échantillon) est nécessaire pour permettre la soustraction des contributions naturelles dues à l'environnement du laboratoire ou éventuellement des contaminations rémanentes du détecteur.

Un spectre de fond est mesuré en plaçant une boite vide à mesurer périodiquement. Les données obtenues sont enregistrées et utilisées pour chaque mesure d'échantillon.

### 3.11 L'identification des radionucléides

Apres avoir cherché et marquer les pics présents dans le spectre, on les identifie, en notant que les radioéléments sont identifiés selon l'énergie d'émission de photons pour chaque élément.

Dans le logiciel Genie 2000, Il y a une bibliothèque adaptée qui précisera automatiquement les radioéléments et calculera leur concentration en activité (voir figure 3.16).

Pour chaque radionucléide, la bibliothèque contient les informations sur les données nucléaires, à savoir :

- -La période radioactive ou demi-vie;
- -Les énergies des différents pics d'absorption;
- -Les probabilités d'émission des pics.

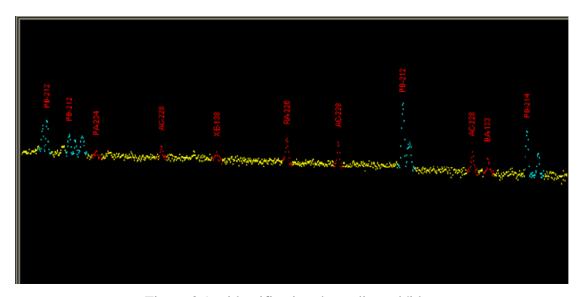


Figure 3.16: identification des radionucléides

Dans notre mémoire, nous intéressons d'identifier les radionucléides cité dans le tableau ci-dessous (voir tableau 3.2).

radionucléide	Probabilité d'émission	Energie de pic d'absorption (keV)	période de demi-vie	
$^{40}\mathrm{K}$	10.55	1460.82	1,28. 109 ans	
<sup>137</sup> Cs	84.99	661.66	30, 17 ans	
<sup>226</sup> Ra	3.56	186.21	1602 ans	
<sup>235</sup> U	51	185.7	7,04. 108 ans	
	10.94	143.77	7,04. 108 ans	
<sup>238</sup> U via <sup>234m</sup> Pa	0.85	1001.03	4,47. 109 ans	
<sup>232</sup> Th via <sup>228</sup> Ac	26.2	911.2	1,41. 1010 ans	

Tableau 3.2: les radionucléides étudiés dans notre mémoire

Lors de la mesure de l'échantillon, le radioélément <sup>137</sup>Cs est mesurée directement grâce à leur énergie gamma 661,66 keV [26], ainsi que le <sup>40</sup>K à 1460,82 keV. Autrement, l'uranium <sup>238</sup>U et le thorium <sup>232</sup>Th sont mesurée indirectement via leur fils <sup>234m</sup>Pa et <sup>228</sup>Ac respectivement, qui atteindre l'équilibre séculaire; ils sont identifié à l'énergie gamma 1001,03 keV et 911,2 keV respectivement [29].

## 3.12 Calcul d'activité

Après l'identification des pics et le calcul de leur surface net et l'efficacité, la concentration d'activité est calculée selon l'équation suivante [32]:

$$A = \frac{surface\ net\ de\ pic}{\varepsilon \times p_{\gamma} \times t \times k_c \times m}$$
 (3.12)

Avec:

N : surface net du pic

t : temps de mesure en secondes

m : masse de l'échantillon en gramme

Pγ(E): Probabilité d'émission d'un photon gamma à l'énergie E

 $\mathcal{E}(E)$ : Efficacité de détection;

K<sub>C</sub>: Facteur de décroissance.

Notamment chaque radionucléide émet des rayons  $\gamma$  à différentes énergies, mais seulement l'émission avec une probabilité plus élevée est prise en considération lors du calcul de la concentration de l'activité.

Parfois, nous trouvons deux radioéléments différents émettant deux photons gamma ayant des énergies comparables. Dans l'analyseur multi-canal, un seul pic sera observée tel situation est appelée interférence. L'exemple que nous allons faire face est pour le <sup>226</sup>Ra et l' <sup>235</sup>U que leur énergie sont respectivement 186.21 keV et 185.7 keV. Cependant, l' <sup>235</sup>U a un autre pic d'énergie qui est de 143 keV. Dans ce cas, <sup>235</sup>U est calculée directement à la l'énergie 143 keV et le <sup>226</sup>Ra est calculée à l'énergie 186.2 keV après avoir fait la correction avec l' <sup>235</sup>U.

La correction de la <sup>226</sup>Ra est effectuée en calculant la surface de pic à l'énergie 185.7 keV à partir de l'activité de <sup>235</sup>U sur 143 keV selon l'équation précédant, et on le soustrait de la surface de pic d'interférence à 186.1 keV, calculant de la même façon. Ensuite on obtient la surface de pic de <sup>226</sup>Ra à 186.1 keV, donc leur activité.

## 3.13 Calcul d'activité minimum détectable (AMD)

C'est l'activité minimale qui peut être détecté et quantifié. Il dépend de la composition de la matrice, de l'énergie des photons d'émission, l'efficacité du détecteur sur la ligne de gamma intéressante, de bruit de fond et la date de prélèvement.

Il est très important de déterminer si le nombre de comptage mesuré sur un canal donné est considéré comme un signal par rapport à la valeur de comptage de fond.

Une activité minimale détectable AMD (minimum detectable activity-MDA) peut être calculée à la fois pour les radionucléides qui n'ont pas été trouvé dans le spectre, ainsi que pour ceux qui ont été trouvés.

Les méthodes développées par Curie sont largement acceptées et utilisés comme base pour calculer l'activité minimale détectable [30].

La méthode de Curie est basée sur deux concepts importants:

-Un niveau critique (critical level)  $L_C$  en dessous duquel un signal net ne peut pas être détecté de manière fiable

-Limite de détection (Detection limit)  $L_D$ : le plus petit signal net que peut être quantifiée (voir figure 3.17).

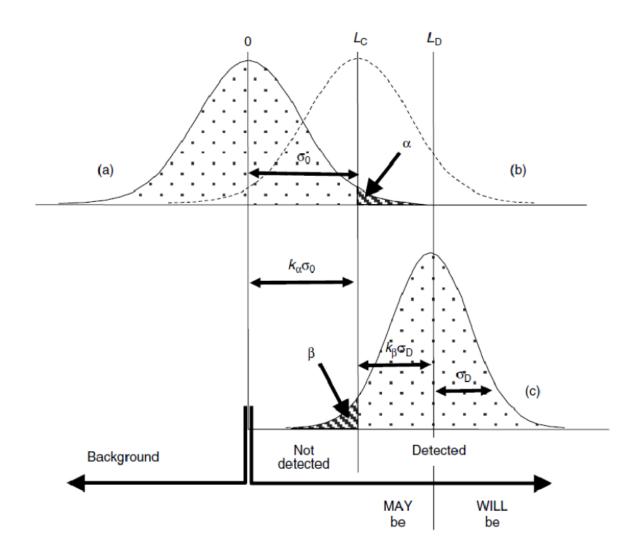


Figure 3.17: Définition de la limite de détection (l'axe vertical représente la fréquence de l'observation d'un comptage particulier)

Mathématiquement le niveau critique  $L_{C}$  et la limite de détection  $L_{D}$  sont donnés par

$$L_C = K_\alpha \, \sigma_0 \tag{3.13}$$

$$L_D = L_C + K_\beta \, \sigma_D \tag{3.14}$$

Où:

 $K\alpha$  et  $K_{\beta}$  sont abscisses de la distribution normale (gaussienne) correspondant à niveau de probabilité de 1- $\alpha$  et 1- $\beta$ .

 $\sigma_0$  et  $\sigma_D$  sont l'écart type donné dans la figure 3.16.

L'activité minimale détectable AMD est donnée par l'équation 3.15 au dessous [17]:

$$ADM = \frac{LD}{t.\epsilon.P\gamma.m.Kc}$$
 (3.15)

Avec:

t : temps de mesure en secondes

m : masse de l'échantillon en gramme

Pγ(E): Probabilité d'émission d'un photon gamma à l'énergie E

ε (E): Efficacité de détection;

K<sub>C</sub>: Facteur de décroissance.

D'après ce qui précède l'analyse de spectre s'effectue d'une telle façon illustrée dans la figure 3.18.

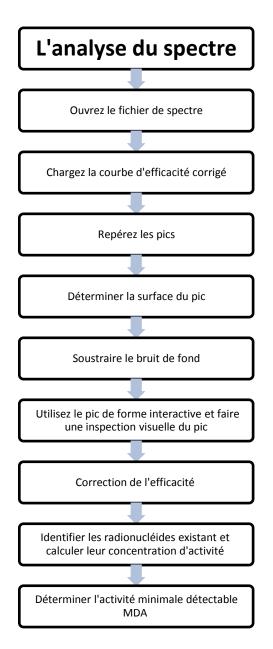


Figure 3.18: Etapes successives d'analyse d'un spectre.

# **CHAPITRE 4: RESULTATS ET DISCUTION**

L'Uranium-238 a été déterminé à partir de l'énergie gamma de son fils <sup>234m</sup>Pa, ainsi que le Thorium-232 via son fils <sup>228</sup>Ac [29]. Le césium-137 a été déterminé directement à partir de son ligne de gamma correspondant 661.66 keV [26], ainsi que le potassium <sup>40</sup>K à 1460.82 keV. Les concentrations d'activité dans le sol sec ont été exprimées en Bq/kg.

Les tableaux 4.1 et 4.2 ci-dessous présentent les coordonnées (Longitude, Latitude et L'altitude) de chaque site où on a prélevé les échantillons ainsi que les concentrations d'activité obtenus.

Numéro d'échantillon	site	Longitude (N°)	Latitude (E°)	L'altitude z(m)	
#12583	Talya	33 °56' 20"	36°5'36"	1013.7	
#12506	Deir el ahmar	34°6'56"	36°7'54"	993.8	
#12584	Hawche al nabi	33°55'.35"	36°3'52"	975.4	
#12459					
#12460	Bsayle	34°7'.53"	36°7'20"	1120.8	
#12461					
#12623					
#12624	El taybe	33°58'.8"	36°9'3"	1119.1	
#12625					
#12491					
#12492	Baalbek mahatta	34°0'10"	36°11'41"	1123.3	
#12493					
#12428	Hawche barada	34°0'41"	36°7'17"	1015.2	
#12429	Nahle	34°1'12"	36°13'26"	1207	
#12430	Majdaloun	33°58'48"	36°8'47"	1073.1	
#12431	Beit chama	33°55'18"	36°2'1"	977.5	
#12564					
#12565	El khraybeh (1)	33°52'37"	36°8'54"	1360.8	
#12566					
#12540	El khraybeh (2)	33°52'59"	36°11'23"	1539.52	
#12543	Ham-meerboun	33°51'58"	36°11'53"	1478.6	
#12541	El nabi shit	33°52'33"	36°7'20"	1245.7	
#12539	Janta	33°51'48"	36°6'54"	1132.7	

Tableau 4.1:Coordonnées de sites d'échantillonnage

numéro d'échantillon	site	Longitude (N°)	Latitude (E°)	L'altitude z(m)
#12561				
#12562	Yahfoufa	33°51'37"	36°7'32"	1159.2
#12563				
#12542	El khoder	33°53'49"	36°7'47"	1170
#12587	Ein bourdai	33°58'11"	36°9'56"	1148.9
#12585	Jabaa	34°0'20"	36°2'26"	1136.8
#12560	Chmoustar	33°58'26"	36°1'30"	1134.3
#12588	Chmoustar- El darje	33°57'27"	36°1'47"	1147.4
#12545	Chmoustar - El slouki	33°57' 21"	36°0'38"	1232.7
#12544	Maane	34°3' 37"	36°11'35"	1066.9
#12586	El bazzeliye	34°8' 39"	36°17'6"	978.85
#12618				
#12619	Swaydeye	34°24'33"	36°14'49"	1825.1
#12620				
#12622	Ein el bayda	34°23'13"	36°15'58"	1877.25
#12591	Marjhin1	34°22'20"	36°16'29"	1755.96
#12589	Marjhin2	34°22'58"	36°17'41"	1746.3
#12590	Teffeh-marjhin3	34°22'35"	36°19'8"	1409.6
#12621	Marjhin4	34°23'3."	36°21'2"	1207.1

Tableau 4.1:Coordonnées des sites d'échantillonnage

Numéro d'échantillon	<sup>40</sup> k (Bq/Kg)	<sup>137</sup> Cs (Bq/Kg)	<sup>235</sup> U (Bq/Kg)	<sup>226</sup> Ra (Bq/Kg)	<sup>232</sup> Th via <sup>228</sup> Ac (B/Kg)	U-238 via <sub>234m</sub> Pa(Bq/Kg)
#12583	565±17	2.61±0.12	5.99±0.23	79±10	46.34±2.018	36.31±9.27
#12584	373±11	2.27±0.08	4.30±0.16	45±4	30.76±1.3	17.66±5.6
#12585	503±15	27.22±0.70	4.37±0.20	70.07±3.16	42.03±1.86	< AMD
#12586	300±9	8.4±0.2	3.19±0.14	22±3	24.99±1.13	23.97±6.7
#12587	510±15	7.2±0.2	5.76±0.23	90±10	50.93±2.2	26.46±8.7
#12588	551±16	17.95±0.5	6.35±0.23	77±8	57.75±2.39	19.33±6.58
#12589	419±12.94	37.36±0.94	7.77±0.29	105±37	38.55±1.7	34.58±8.66
#12590	555±16	23.15±0.6	8.43±0.30	135.1±4.86	51.95±2.23	43.66±8.96
#12591	55.9±1.827	6.61±0.17	3.50±0.12	56.11±2.04	6.27±0.317	21.88±4.03
#12623	516±15	39.06±0.98	5.81±0.2376	102±26	46.6±2.03	35.96±9.08
#12624	558±15	15.58±0.39	6.66±0.2205	120±24	52.13±2.18	48.41±6.6
#12625	533±16	5.52±0.19	6.10±0.2343	110±21	51.25±2.2	30.7±8.5

Tableau 4.2: Concentration d'activité des échantillons

Numéro d'échantillon	<sup>40</sup> k (Bq/kg)	<sup>137</sup> Cs (Bq/kg)	<sup>235</sup> U (Bq/kg)	<sup>226</sup> Ra (Bq/kg)	<sup>232</sup> Th via <sup>228</sup> Ac (B/kg)	<sup>238</sup> U via <sup>234m</sup> Pa (Bq/kg)
#12428	420±12	1.572±0.09	2.52±0.15	40.45±2.4	29.34±1.32	39.21±6.79
#12429	98±3	7.721±0.23	2.743±0.14	32±2	9.58±0.53	33.53±5.06
#12430	603±17	16.65±0.44	7.021±0.26	112.6±4.1	53.57±2.28	25.98±8.01
#12431	252±7	2.922±0.11	4.4±0.166	52±10	32.8±1.41	39.69±5.44
#12459	571±17	8.431±0.27	6.2±0.25	55±8	56.8±2.45	43.59±9.5
#12460	571.±16	4.399±0.15	6.4±0.23	102.7±3.63	60.77±2.55	79.04±8.4
#12461	583±16	3.58±0.13	6.77±0.24	65±8	60.5±2.55	58.57±8.03
#12491	230±12	8.93±0.44	2.22±0.19	35.62±2.99	12.7±0.89	43.37±7.93
#12492	224±8	6.93±0.25	1.92±0.18	< AMD	15.07±0.89	33.72±11.18
#12493	224±7	3.159±0.14	3.1±0.17	35±6	17.8±0.92	< AMD
#12506	302±9	2.37±0.098	2.72±0.13	43.62±2.1	37.1±1.59	22.84±5.04
#12539	552±16	21.51±0.57	6.66±0.26	78±12	55.57±2.39	29.6±8.94
#12540	665±18	14.65±0.36	8.7±0.28	139.7±4.43	54.55±2.3	< AMD
#12541	432±44	31.6±2.74	6.11±0.58	98.05±9.36	42.46±3.63	< AMD
#12542	482±14	30.85±0.8	6.07±0.25	63±7	49.88±2.17	< AMD
#12543	203±6	8.69±0.22	2.8±0.12	30±3.7	29.69±1.28	37±4.56
#12544	438±13	11.49±0.33	3.95±0.19	47±8	41.07±1.8	< AMD
#12545	307±31	7.73±0.68	12.74±1.18	103±13	26.82±2.32	82.78±10.46
#12560	50.76±2	3.59±0.12	4.15±0.17	34±4	4.49±0.324	45.28±7.03
#12561	297±30	13.07±1.14	3.39±0.38	43±6	19.63±1.73	< AMD
#12562	286±9	13.66±0.4	3.36±0.18	43±5	22.3±1.088	25±9.34
#12563	301±9	10±0.292	3.51±0.17	56.3±2.72	23.47±1.1	< AMD
#12618	868±25	18.94±0.5078	8.62±0.31	99±14	50.84±2.20	48.64±10.44
#12619	738±20	15.12±0.37	7.53±0.24	100±10	42.52±1.81	58.51±7.11
#12620	744±21	12.95±0.36	6.95±0.26	78±14	43.11±1.89	44.54±9.71
#12621	364±11	28.09±0.71	11.05±0.37	136±15	33.63±1.49	45.52±8.66
#12622	254±8	36.75±0.91	5.74±0.22	70±22	26.53±1.20	< AMD
#12564	59±2	0.71±0.06	5.21±0.24	45±13	6.897±0.45	40±8.38
#12565	46±2	0.28±0.053	5±0.21	38±5	4.706±0.40	44.24±8.97
#12566	42±2	< AMD	5.29±0.21	57±12	4.983±0.39	30.9±8.09

Tableau 4.2: Concentration d'activité des échantillons

- AMD signifie l'activité minimum détectable.

# 4.1 Interprétation de la concentration d'activité

## Uranium-238

La concentration de l'activité moyenne de l'uranium-238 obtenu dans les zones d'échantillonnage est de  $30.72 \pm 6.18$  Bq/kg, avec une valeur maximale de  $82.78 \pm 10.46$  Bq/kg. Par comparaison à l'échelle internationale, cette moyenne est inférieure

à la valeur moyenne mondiale (**35 Bq/kg**) [34]. Mais ce résultat reste dans le même ordre de grandeur que la valeur mondiale.

#### Thorium-232

La concentration moyenne de l'activité du <sup>232</sup>Th obtenu dans les zones d'échantillonnage est de **34.97** ± **1.63** Bq/kg, avec une valeur maximale de **60.77** ± **2.55** Bq/kg. Cette concentration est comparable à la valeur moyenne mondiale (**35** Bq/kg) [34]. Ces valeurs restent aussi dans le même ordre de grandeur que la moyenne mondiale.

#### Potassium-40

Concernant le Potassium-40, la concentration moyenne d'activité obtenue dans les zones d'échantillonnage est de 396.31 ± 13.51 Bq/kg, avec une valeur maximale de 868 ± 25 Bq/kg. Cette concentration est près comparable à la valeur moyenne mondiale qui est de 400 Bq/kg [34,35]. Notons que ce résultat est dans le même ordre de grandeur que la moyenne mondiale

#### Radium-226

La concentration moyenne de l'activité du  $^{226}$ Ra obtenu dans les zones d'échantillonnage est de  $70.8 \pm 9.1$ Bq/kg. Cette concentration est significativement supérieure à la valeur moyenne mondiale (30 Bq/kg) [34] : elle est à peu près deux fois plus grande.

#### Césium-137

Le césium-137 a été détecté dans tous les sites avec des variations significatives. Ses niveaux variaient de  $0.28 \pm 0.05$  à  $39.06 \pm 0.97$  Bq /kg avec une moyenne de  $12.84 \pm 0.43$  Bq / kg. La variabilité dans ses niveaux est souvent associée à la texture du sol [36].

Les niveaux élevés ont été observés dans les zones non érodée et non gazonnés. Cela peut être attribué au sol d'argile, qui contient des résidus de matière organique biogène et a une capacité de retenir le nucléide <sup>137</sup>Cs [36]. La forte rétention de <sup>137</sup>Cs à la surface de différents types de sols est souvent due aux présences de minéraux argileux et organiques [37].

Les teneurs en matière organique ont été suggérées à affecter la rétention et la migration des radionucléides retombées dans l'environnement. Une hypothèse a été également suggérée que la matière organique modifie les propriétés d'adsorption des minéraux argileux dans le sol [36].

Par une comparaison régionale, les valeurs de <sup>137</sup>Cs étaient inferieures aux valeurs rapportées dans d'autres pays voisins. Les résultats sont présentés dans le tableau 4.3.

site	<sup>238</sup> U (via <sup>234m</sup> Pa)	<sup>232</sup> Th (via <sup>228</sup> Ac)	<sup>40</sup> K	<sup>137</sup> Cs	<sup>226</sup> Ra
Travail présent	17.6-82.7	4.5-60.8	42-868	0.3-39.6	22-140
Mont Liban [38]	8-132	5-77	11-888	0.4-115	1.8-227.7
Liban nord [5]	4-73	5-50	57-554	2-113	-
Egypt [34]	6-120	2-96	29-650	-	5-64
Algérie [34]	2-110	2-140	66-1150	-	5-180
Syrie [34]	6-69	3-50	87-755	1-143	13-32
Jordan [1] [40]]	2-76	6-86	84-517	8-576	-
Trabzon (Turky) [35]	41	35	437	21	-
Istanbul (Turky) [41]	21	37	342	1.8-81	-

Tableau 4.3: Comparaison des concentrations d'activité aux échantillons de sol en Bq/kg obtenues dans le travail présent avec les pays voisins.

D'autre part la concentration d'activité de la <sup>137</sup>Cs dans le travail présent est inférieure à celle du mont Liban et Liban nord, celui-ci est justifié par l'existence le chaine occidental des monts du Liban qui empêche les nuages et ensuite les pluies, viennent de l'accident Tchernobyl.

Les résultats de la concentration de l'activité des radionucléides artificiels et naturels peuvent être résumés dans le tableau 4.4.

Radio-isotope	<sup>40</sup> k (Bq/Kg)	<sup>137</sup> Cs (Bq/Kg)	<sup>235</sup> U (Bq/Kg)	<sup>226</sup> Ra (Bq/Kg)	<sup>232</sup> Th via <sup>228</sup> Ac (B/Kg)	<sup>238</sup> U via <sup>234m</sup> Pa (Bq/Kg)
Minimum	419±12.94	0.28±0.053	1.92±0.18	22±3	4.49±0.324	17.66±5.6
Maximum	868±25	39.06±0.98	12.74±1.18	139.7±4.43	60.77±2.55	82.78±10.46
Moyenne	396.31± 13.51	$12.84 \pm 0.43$	$5.50 \pm 0.25$	$70.08 \pm 9.1$	34.97± 1.63	30.72± 6.18
Valeur moyenne mondiale	400	-	-	30	35	35

Tableau 4.4: Résumé de la concentration de l'activité et comparaison avec le moyen mondial

## 4.2 Distribution verticale de la concentration en activité des radionucléides

La Profile de profondeur a été réalisée dans six endroits différents à Baalbek-El hermel. Les résultats sont présentés sur le tableau 4.5 ci-dessous:

site	profondeur	<sup>40</sup> K (Bq/kg)	<sup>137</sup> Cs (Bq/kg)	<sup>235</sup> U (Bq/kg)	<sup>226</sup> Ra (Bq/kg)	<sup>232</sup> Th via <sup>228</sup> Ac (Bq/kg)	<sup>238</sup> U via <sup>234 m</sup> Pa (Bq/kg)
Deir el	0-3 cm	571±17	8.43±0.27	6.20±0.25	55±8	56.76±2.45	43.59±9.569
ahmar-	3 – 8 cm	571±16	4.40±0.154	6.4±0.23	102.70±3.6	60.77±2.55	79.04±8.403
Bsayle	8 – 15 cm	583±16.	3.59±0.14	6.78±0.24	65±8	60.49±2.55	58.57±8.031
	0 - 3  cm	230±12.	8.93±0.44	2.22±0.19	35.62±2.99	12.68±0.89	43.37±7.929
Baalbek- Mahatta	3 -8 cm	224±8	6.93±0.26	1.92±0.18	<amd< td=""><td>15.07±0.89</td><td>33.72±11.18</td></amd<>	15.07±0.89	33.72±11.18
	8 -15 cm	224±7.	3.16±0.14	3.10±0.17	35±6	17.77±0.92	<amd< td=""></amd<>
	0 - 3  cm	297±30	13.07±1.14	3.40±0.38	43±6	19.63±1.73	<amd< td=""></amd<>
Yahfoufa	3 – 8 cm	286±9	13.66±0.39	3.37±0.18	43±5	22.30±1.09	25±9.341
	8 – 15 cm	301±9	10.00±0.29	3.51±0.17	56.28±2.72	23.47±1.10	<amd< td=""></amd<>
	0-3 cm	868±24	18.94±0.51	8.6±0.31	99±14	50.84±2.20	48.64±10.44
sowaydiye	3 – 8 cm	738±20	15.12±0.37	7.54±0.24	100±10	42.52±1.81	58.51±7.11
	8 – 15 cm	744±21	12.95±0.36	6.949±0.26	78±14	43.11±1.89	44.54±9.716
	0-3 cm	59±2	0.71±0.06	5.22±0.21	45±13	6.90±0.452	39.98±8.38
Khraybe-1	3 – 8 cm	46.13±2	0.28±0.05	4.98±0.21	38±5	4.71±0.41	44.24±8.966
	8 – 15 cm	42±2	<amd< td=""><td>5.30±0.21</td><td>57±12</td><td>4.98±0.39</td><td>30.89±8.093</td></amd<>	5.30±0.21	57±12	4.98±0.39	30.89±8.093
El taybe	0-3 cm	516±15	39.06±0.979	5.81±0.24	102±26	46.60±2.03	35.96±9.081
	3 – 8 cm	558±15	15.58±0.3892	6.66±0.22	120±24	52.13±2.18	48.41±6.61
	8 – 15 cm	533±16	5.523±0.188	6.10±0.23	110±21	51.25±2.20	30.7±8.497

Tableau 4.5: Donnés de profil de profondeur

Les résultats montrent qu'il ya stabilité de <sup>238</sup>U, <sup>232</sup>Th, <sup>235</sup>U, <sup>226</sup>Ra et <sup>40</sup>K dans la plupart des endroits comme on le voit dans les figures 4.1, 4.2, 4.3, 4.4, 4.5 et 4.6 cidessous.

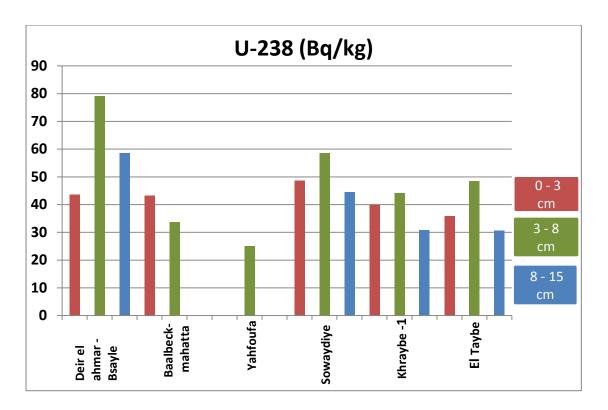


Figure 4.1: Concentration d'activité de  $^{238}U$  avec une variation de la profondeur

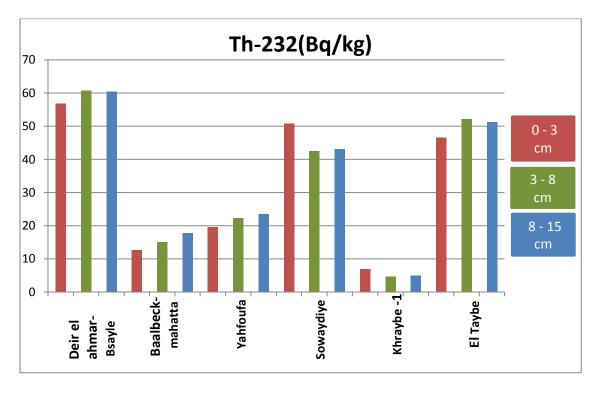


Figure 4.2: Concentration d'activité de <sup>232</sup>Th avec une variation de la profondeur

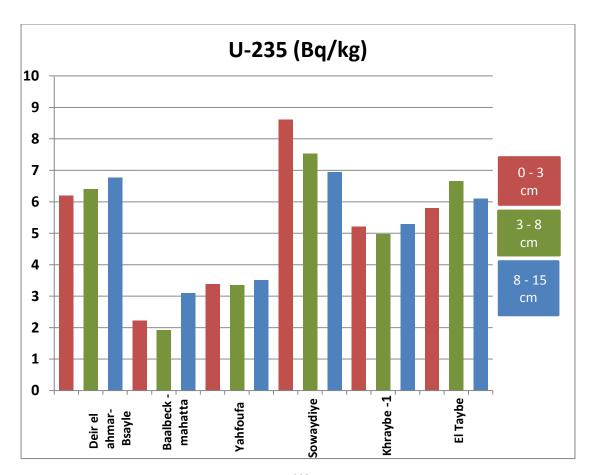


Figure 4.3: Concentration d'activité de <sup>235</sup>U avec une variation de la profondeur

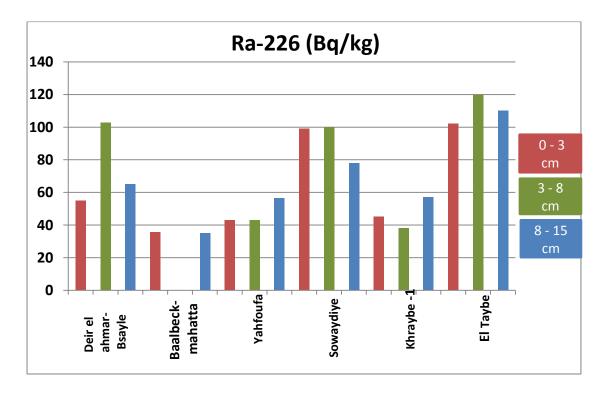


Figure 4.4: Concentration d'activité de <sup>226</sup>Ra avec une variation de la profondeur

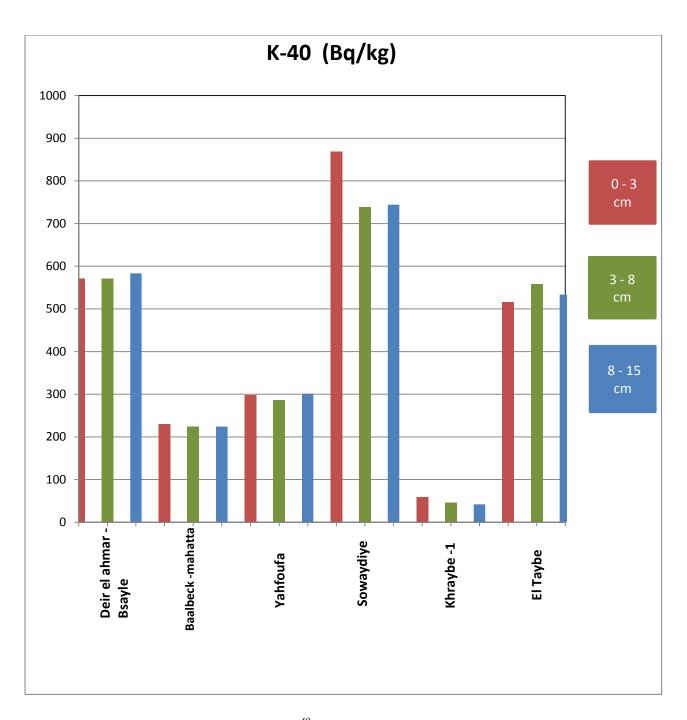


Figure 4.5: Concentration d'activité de <sup>40</sup>K avec une variation de la profondeur

Nous remarquons une instabilité pours la concentration de l'<sup>238</sup>U dans les sites de Ballaback – mahatta et Yahfoufa, c'est qui réfléchit une érosion du sol a été à ces sites, ensuite une mélange du sol.

D'autre part, la concentration de l'activité du <sup>137</sup>Cs diminue avec la profondeur, comme indiqué dans la figure 4.6 ci-dessous.

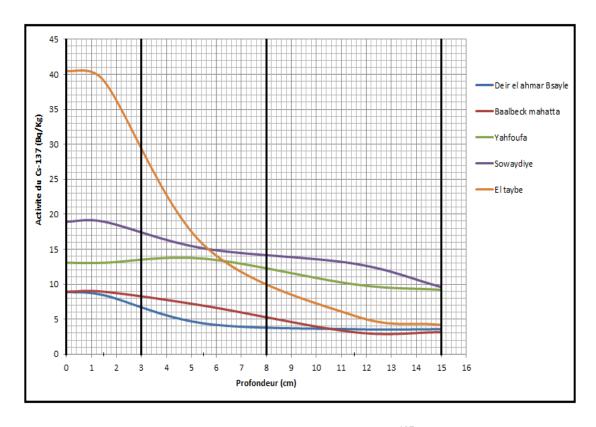


Figure 4.6: diminution de la concentration d'activité du <sup>137</sup>Cs avec la profondeur.

## 4.3 Distribution horizontale de la concentration en activité des radionucléides

L'activité de surface (0 – 3 cm) est calculée suivant l'équation suivante ci-dessous:

Activité surfacique 
$$(Bq/m^2) = \frac{Activité (Bq/Kg) \times masse totale d'échantillon sec}{surface d'échantillon(m^2)}$$
 (4.1)

Les résultats sont représentés sur le tableau 4.6:

Numéro	<sup>40</sup> k (kBq/m <sup>2</sup> )	<sup>137</sup> Cs	<sup>235</sup> U	<sup>226</sup> Ra	<sup>232</sup> Th via <sup>228</sup> Ac	<sup>238</sup> U via <sup>234m</sup> Pa
d'échantillon	к (квф/пг)	$(kBq/m^2)$	(kBq/m <sup>2</sup> )	(kBq/m <sup>2</sup> )	(kBq/m <sup>2</sup> )	(kBq/m <sup>2</sup> )
#12428	18.01	0.07	0.11	1.73	1.26	1.68
#12429	3.15	0.25	0.09	1.03	0.31	1.08
#12430	23.51	0.65	0.27	4.39	2.09	1.01
#12431	11.62	0.13	0.20	2.39	1.51	1.83
#12459	21.80	0.32	0.24	2.10	2.17	1.66
#12491	4.04	0.16	0.04	0.63	0.22	0.76
#12506	11.97	0.09	0.11	1.73	1.47	0.90
#12539	14.94	0.58	0.18	2.11	1.50	0.80
#12540	14.67	0.32	0.19	3.08	1.20	<amd< td=""></amd<>
#12541	8.63	0.63	0.12	1.96	0.85	<amd< td=""></amd<>
#12542	11.83	0.76	0.15	1.55	1.23	<amd< td=""></amd<>
#12543	6.52	0.28	0.09	0.96	0.95	1.19
#12544	8.23	0.22	0.07	0.88	0.77	<amd< td=""></amd<>
#12545	8.04	0.20	0.33	2.70	0.70	2.17
#12560	1.15	0.08	0.09	0.77	0.10	1.03
#12561	7.62	0.34	0.09	1.10	0.50	<amd< td=""></amd<>
#12618	23.44	0.51	0.23	2.67	1.37	1.31
#12621	8.21	0.63	0.25	3.07	0.76	1.03
#12622	7.05	1.02	0.16	1.95	0.74	<amd< td=""></amd<>
#12564	2.17	0.03	0.19	1.66	0.25	1.47
#12583	22.47	0.10	0.24	3.14	1.84	1.44
#12584	9.91	0.06	0.11	1.20	0.82	0.47
#12585	13.61	0.74	0.12	1.90	1.14	<amd< td=""></amd<>
#12586	6.31	0.18	0.07	0.46	0.53	0.51
#12587	16.92	0.24	0.19	2.99	1.69	0.88
#12588	16.22	0.53	0.19	2.27	1.70	0.57
#12589	9.82	0.88	0.18	2.46	0.90	0.81
#12590	13.47	0.56	0.20	3.28	1.26	1.06
#12591	1.68	0.20	0.11	1.69	0.19	0.66
#12623	12.61	0.95	0.14	2.49	1.14	0.88

Tableau 4.6: concentration d'activité surfacique des radioéléments

Les concentrations d'activité surfacique dues à la présence de ces radionucléides varient entre 0.47 kBq/m² et 2.17 kBq/m² pour <sup>238</sup>U, 0.04 kBq/m² et 0.33 kBq/m² pour <sup>235</sup>U, 0.1 kBq/m² et 2.17 kBq/m² pour <sup>232</sup>Th, 1.15 kBq/m² et 23.51 kBq/m² pour <sup>40</sup>K et entre 0.46 kBq/m² et 4.93 kBq/m² pour <sup>226</sup>Ra. Pour le <sup>137</sup>Cs, la concentration de l'activité surfacique varie de 0.03 kBq/m² à 1.02 kBq/m².

En se basant sur ces résultats, nous effectuons des cartes radioactives des l'Uranium-238 et le thorium-232 pour Baalbeck-El hermel, comme ci montre la figure 4.2.

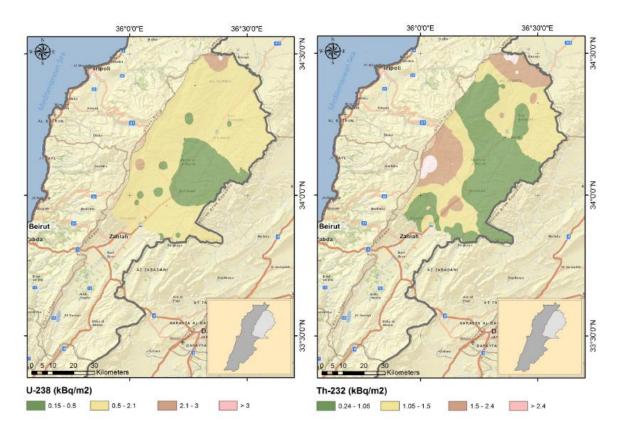


Figure 4.7: cartes radioactives des l'Uranium-238 et le thorium-232 pour Baalbeck-El hermel

# 4.4 Estimation des débits de dose

Le débit total de dose absorbée en nGy/h dans l'air à 1 m au-dessus de la surface du sol en raison des concentrations d'activité des radionucléides naturels <sup>238</sup> U, <sup>232</sup>Th et <sup>40</sup>K (Bq.kg<sup>-1</sup>) peut être calculé selon l'UNSCEAR équation 2000 [34] :

$$D_{nGy/h} = 0.429CU + 0.666CTh + 0.042CK$$
 (4.2)

Où  $C_U$  est l'activité spécifique de  $^{238}U$  via  $^{234m}$ Pa en Bq/kg,  $C_{Th}$  est l'activité spécifique de  $^{232}$ Th Via  $^{228}$ Ac en Bq/kg, et  $C_K$  est l'activité spécifique de  $^{40}$ K en Bq/kg.

Les valeurs de dose absorbée due aux radionucléides naturels obtenues, ont une gamme de **15.91 nGy/h** à **91.19 nGy/h** avec une moyenne de **52.23 nGy/h**. Les taux moyens des échantillons étudiés de dose est inférieur au débit de dose dans l'air extérieur de rayons gamma terrestres dans des conditions normales, **57 nGy/h** [34].

Pour estimer la dose efficace annuelle en unités de  $\mu Sv$  pour les radionucléides naturels, le coefficient de conversion du débit de dose absorbé à la dose efficace de 0.7 Sv/Gy et le coefficient d'occupation extérieure de 0.2 [34], sont utilisées multiplié par le nombre d'heures par année qui est 8760 heures comme on le voit dans l'équation ci-dessous.

Dose efficace = 
$$\frac{\text{DnGy/h} \times 8760 \times 0.2 \times 0.7 \text{Sv/Gy}}{1000}$$
 (4.3)

Les valeurs obtenues des taux de dose efficace annuelle due aux radioéléments naturels varient de 19.51 μSv/an à 111.84 μSv/an avec une moyenne de 64.06 μSv/an. Alors que la dose efficace annuelle moyenne mondiale due aux radioéléments naturels est d'environ 500 μSv [34], les résultats pour les différents pays mentionnés dans l'UNSCEAR de 2000 sont généralement dans la gamme 300-600 μSv/an comme en Algérie et l'Égypte et en Syrie [34].

L'origine de la différence remarquée entre la valeur moyenne de la dose efficace obtenue due aux radionucléides naturels et celle de la dose efficace moyenne mondiale, apparait du faite qu'on n'a pas pris en considération la contribution de gaz de radon et aussi celle de rayonnement cosmique.

Le débit de dose absorbée dans l'air à 1 m de la surface du sol en raison de niveaux de <sup>137</sup>Cs dans le sol a été calculé en utilisant le facteur de conversion de taux de dose absorbée de 0,03 nGy/h [42] pour Bq/kg tel que mentionné dans l'équation ci-dessous:

$$D_{\text{nGy/h}} = 0.03 \times C_{\text{Cs}}$$
 (4.4)

Les gammes de dose équivalente de <sup>137</sup>Cs est de 0.02 à 1.17 nGy/h. Le minimum et le maximum sont dus à des échantillons de sol prélevés à partir de l'échantillonnage à Baalbek-El hermel, tandis que la dose équivalente moyenne est de 0.45 nGy/h.

La dose efficace annuelle du <sup>137</sup>Cs a été calculée comme précédemment selon l'équation (4.3).

Le tableau 4.7 ci-dessous résume les résultats de dose équivalente, efficace et totale pour les radionucléides naturels et artificiels.

	Dose équivalente	Dose équivalente	Dose efficace	Dose efficace	Dose efficace	
	naturelle	artificielle	naturelle	artificielle		
	(nGy/h)	(nGy/h)	(μSv/an)	(µSv/an)	totale (µSv/an)	
Minimum	15.91	0.02	19.51	0.03	19.75	
Maximum	91.19	1.17	111.84	1.44	112.54	
Moyenne	52.23	0.45	64.06	0.55	64.6	

Tableau 4.7: Dose équivalent, efficace et totale pour les radionucléides naturels et artificiels

Comme ceci dans le tableau précédent, la dose efficace annuelle totale est obtenue entre 19.75  $\mu Sv/an$  et 112.54  $\mu Sv/an$  avec une moyenne 64.6  $\mu Sv/an$ . On note que cette moyenne est inférieure à la limite permissible 1000  $\mu Sv$  /an pour le publique [43]

Les contributions des radionucléides mesurés à la dose efficace annuelle totale sont de 0.8% pour le radionucléide artificiel  $^{137}$ Cs, tandis que celles des radionucléides naturels  $^{238}$  U,  $^{232}$ Th et  $^{40}$ K sont de 22.7%, 45.1% et 31.4% respectivement.

## Conclusion

Quarrent et deux échantillons de sol prélevés dans 30 endroits dans la région du Baalbek –El hermel nous conduisaient à recueillir des données concernant la répartition des radionucléides naturels et artificiels qui servent à estimer les doses efficaces annuelles de rayonnement dans le sol et faire une comparaison au niveau international. Les résultats montrent que les concentrations de radionucléides naturelles primordiale de <sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U, <sup>232</sup>Th, <sup>226</sup>Ra et <sup>40</sup>K, varient entre 17.66 et 82.78 Bq/kg, 1.93 et 12.74 Bq/kg 4.49 et 60.77 Bq/kg, 22 et 140 Bq/kg et 41.98 et 868.30 Bq/kg, et respectivement, et ont des valeurs moyennes dans le même ordre de grandeur que la moyenne mondiale. Bien que, les résultats montrent que la zone contient radionucléide artificielle <sup>137</sup>Cs qui a été détecté dans tous les sites avec des variations significatives de 0.28 Bq/kg à 39.06 Bq / kg.

La moyenne obtenue de la dose efficace annuelle totale est de  $64.6~\mu Sv/an$ , qui est sous la limite  $1000~\mu Sv/an$  (selon UNSCEAR 2000) où la contribution de  $^{137}Cs$  est d'environ 0.8%, ce qui signifie que notre région est légèrement affectée à activités nucléaires provenant de l'extérieur de la région. (Test nucléaire de 1960 et de l'accident de Tchernobyl en 1986)

Enfin, La mesure de la teneur naturelle et artificielle de la radioactivité dans le sol est très importante pour fixer un niveau de référence et puis tracer la tendance avec le temps à la suite de tout rejet radioactif pour l'application de protection publique environnemental. Pour cette raison, les résultats obtenus sont très importants au niveau national, car ils aident et contribuent à construire une carte radioactive de la région du Baalbek –El hermel. Ces données seront enregistrées et seront utiles en cas d'incident ou d'accident nucléaire.

Ainsi et dans le cadre de programme de CLEA, ce travail sera se continuer pour inclure les deux provinces restants: le Liban sud et le Bekaa.

## Références

- [1] Abu-Haija, O. Determination of natural radionuclides concentrations in surface soil in Tafila/Jordan. Modern Applied Science 6 (3), 87-90. (2012).
- [2] UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation). Sources, Effects of Ionizing Radiation. United Nations, volume 1, New York.(2008).
- [3] Baldik, R., Aytekin, H., Erer, M. Radioactivity measurements due to natural radiation in Karabük (Turkey). Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 289 (2), 297-302. (2011).
- [4] Celik, N., Cevik, U., Celik, A., Koz, B. Natural and artificial radioactivity measurements in Eastern Black Sea region of Turkey. Journal of Hazardous materials 162, 146-15. (2009).
- [5] O. El Samad, R. Baydoun, B. Nsouli, T. Darwish. Determination of natural and artificial radioactivity in soil at North Lebanon province. Journal of Environmental Radioactivity; 125(2013):36-39. (2013).
- [6] W.E.Meyerhof, élément de physique nucléaire, (1970).
- [7] Christine Jimonet et Henri Métivier, Personne compétente en radioprotection principes de radioprotection réglementation, (2007).
- [8] La radioactivité naturelle en 10 épisodes. SFRP, (1998).
- [9] CRAM CENTRE Sécurité Sociale, Eléments de Radioprotection, Notions de Physique Atomique 3ème édition, Chapitre IV, Mars (2001).

- [10] H. JOFFRE Ingénieur Physicien de l'Ecole Supérieure de Physique et Chimie de Paris, Effets Biologiques des faibles doses de Rayonnements Ionisants, Conférence, (2002).
- [11] Les rayonnements et la santé, Extrait de l'ACROnique du nucléaire n°27, décembre (1994).
- [12] la radioactivité, manuel d'initiation. Chelet Y., nucléon, (2006).
- [13] Cohen-Tannoudji, Mécanique Quantique: Tome I. édition revue, corrigée et augmentée d'une bibliographie étendue, (2008).
- [14] syed naeem Ahmed, *Physics and Engineering of Radiation Detection*, first edition (2007).
- [15] Nicholas Tsoulfanidis, *Measurement and detection of radiation*, 2<sup>nd</sup> edition (1995).
- [16] Claude le sech et Christian Ngô, PHYSIQUE NUCLÉAIRE: Des quarks aux applications, (2010).
- [17] K. Debertin and R.G. Helmer. Gamma and X-Ray Spectrometry With semi Conductor Detector, (1988)
- [18] Grossesse et irradiation médicale. CIPR Publication 84, EDP Sciences, (2007).
- [19] Détection de rayonnement , bodineau J.C. , cours Post-Universitaire de Radioprotection, Volume I, Agence Internationale de l'Energie Atomique. Vienne, (1995).

- [20] Rayonnements Ionisants, Dossier INRS, (2009), disponible à: <a href="http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/\_Public/45/071/45071136.pd">http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/\_Public/45/071/45071136.pd</a>
- [21] Le rayonnement ionisant : détection, spectrométrie, dosimétrie, Blanc D., Masson (1990).
- [22] Raymond Limen Njinga, Sunday Adesunloye Jonah, Calibration of the High Purity Germanium Gamma-Ray Spectrometer in CERT, ABU Zaria, Nigeria. Modern Instrumentation, 2015, 4, 11-17 Published Online April 2015 in SciRes, (2015).
- [23] Blanc, D. l'Electronique nucléaire, presses universitaires de France, paris (1971).
- [24] M.haddad: Le Liban. Milieu et population. Beyrouth (1981).
- [25] Ibrahim Hindawy SALEH. Radioactivity of <sup>238</sup>U, <sup>232</sup>Th, <sup>40</sup>K, and <sup>137</sup>Cs and assessment of depleted uranium in soil of the Musandam Peninsula, Sultanate of Oman. Turkish J. Eng. Env. Sci; 36 (2012): 236 248. (2011).
- [26] El Samad, O., Zahraman, K., Baydoun, R., Nasreddine, M. Analysis of radiocaesium in the Lebanese Soil one decade after the Chernobyl accident. Journal of Environmental Radioactivity; 92 (2): 72-79. (2007).
- [27] IEC 1452. International Standard. Nuclear Instrumentation e Measurement of Gamma-ray Emission Rates of Radionuclides e Calibration and Use of Germanium Spectrometers. Geneva, (1995).
- [28] Briant KALL, Zafizara DONNE, Martin RASOLONIRINA, Naivo RABESIRANANA et Gérard RAMBOLAMANANA. Contribution à l'étude de la radioactivité gamma du sable des plages de Ramena et d'Orangea, Antsiranana, Madagascar . Afrique SCIENCE 10(4) 23- 35. (2014).

- [29] Kobeissi, M.A., El Samad, O., Zahraman, K., Milky, S., Bahsoun, F., Abumurad, K.M. Natural radioactivity measurements in building materials in Southern Lebanon. Journal of Environmental Radioactivity 99 (8), 1279e1288, (2008)
- [30] Gilmore R.G. Interaction of gamma radiation with matter. In: John Wiley. Practical Gamma-ray Spectroscopy. John Wiley & son Ltd., 2<sup>nd</sup> edition:25-99, (2008).
- [31] A. Yavar, S. B. Sarmani, K. S. Khoo. The Better Efficiency Calibration for HPGe Detector by Comparing the Single Point Gamma Sources and Multi-nuclides Gamma Source for k0-NAA Method, IOSR Journal of Applied Physics (IOSR-JAP) e-ISSN: 2278-4861. Volume 6, Issue 3 Ver. III (May-Jun. 2014), PP 54-56. (2014).
- [32] Genie 2000 (3.1). Spectroscopy software; Customization manual.
- [33] Quantifying uncertainty in nuclear analytical measurement, IAEA- TecDoc-1401- July (2004).
- [34] UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation. United Nations, New York.), (2000).
- [35] Kurnaz, A., Kucukomeroglu, B., Damlab, N., Cevik, U. Radiological maps for Trabzon, Turkey. Journal of Environmental Radioactivity 102 (4), 393e399.(2011).
- [36] Staunton, S., Dumat, C., Zsolnay, A. Possible role of organic matter in radiocaesium adsorption in soils. J. Environ. Radiact; 58: 163-173. (2002).
- [37] Holgye, Z. and Maly, M. Vertical Distribution and Migration Rates of <sup>239+240</sup> Pu, <sup>238</sup>Pu, and <sup>137</sup>Cs in the Grassland Soil in Three Locations of Central Bohemia. Journal of Environmental Radioactivity; 47(2000): 135-147. (2000).
- [38] M. Abdallah, Natural radioactivity in soil at Mount Lebanon region, Thesis of Master, Beirut arab university, (2015).

- [39] Al-Masri, M.S., Amin, Y., Hassan, M., Ibrahim, S., Khalil, H.S. External gamma radiation dose to Syrian population based on the measurement of gamma emitters in soils. Journal of Radio analytical and Nuclear Chemistry 267 (2),337e343. (2006).
- [40] Al-Hamarneh, I., Wreikat, A., Toukan, K. Radioactivity concentrations of <sup>40</sup>K, <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs, <sup>90</sup>Sr, <sup>241</sup>Am, <sup>238</sup>Pu and <sup>239+240</sup>Pu radionuclides in Jordanian soil samples. Journal of Environmental Radioactivity 67, 53e67. (2003).
- [41] Karahan, G. and Bayulken, A., "Assessment of Gamma Dose Rates around İstanbul (Turkey)", Journal of Environmental Radioactivity 47, 213-221. (2000).
- [42] Celik N, Cevik U, Celik A, Kucukomeroglu B. Determination of indoor radon and soil radioactivity levels in Giresun, Turkey. The Journal of Environmental Radioactivity doi; 99:1349–1354. (2008).
- [43] BSS. International Basic Safety Standards for Protection against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiastion Sources. International Atomic Energy Agency, Vienna. (1996).

## List of abréviation:

 $\beta$ : Beta

 $\gamma: Gamm \\$ 

Am: Américium A: Activité AMD: Activité minimum détectable Bq: Becquerel Cd: Cadmium Cr: Chrome Cs: Césium Co: Cobalt H: Heure GeHP: Germanium à haute purté K: Potassium kev: Kilo électron volt. Kg: Kilogramme LAL: Lower action limit LD: limite de détection Lc: niveau critique mSv: Milli Sievert m:Mètre Mi: Mile NaI: Sodium iodé Ra: Radium Rn: Radon ROI: Region of interest Sr: Strontium T<sub>1/2</sub>: demi-vie Te: Tellurinium Th: Thorium U: Uranium. UAL: Upper action limit UNSCEAR: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation  $\alpha$ : Alpha

# Liste des figures

Figure 1.1: Loi de décroissance radioactive	4
Figure 1.2: Désintégration α d'un noyau lourd	5
Figure 1.3: Chaine de désintégration de l'Uranium-238	11
Figure 1.4: Chaine de désintégration de l'Uranium-235	12
Figure 1.5: Chaine de désintégration du thorium-232	12
Figure 1.6: Spectre en énergie d'électrons suite à des diffusions Compton d'apr	rès (Ne
est le nombre d'électrons sur lesquels le photon a réalisé une diffusion	on
Compton)	14
Figure 1.7: Prédominance du type d'interaction en fonction de l'énergie et du ne	uméro
atomique du matériau	15
Figure 1.8: Principales interactions des photons avec la matière	15
Figure 1.9: La chaine électronique reliée au détecteur	16
Figure 1.10: Structure de détecteur à scintillation	16
Figure 1.11: Détecteur à semi-conducteur	18
Figure 1.12: Les différentes configurations géométriques des détecteurs	
germanium	18
Figure 2.1: Chaine de mesure d'une spectroscopie gamma	27
Figure 2.2: Différentes processus d'interaction lors de la détection des rayonnes	ments
gamma	27
Figure 2.3: La collection de charge dans un détecteur germanium	28
Figure 2.4: L'amplificateur	29
Figure 2.5: Histogrammes donnant le nombre de photons détectés en fonction of	de
nombre de canal	30
Figure 2.6: Un spectre gamma obtenu par un détecteur semi-conducteur	31
Figure 2.7: Définition de la résolution pour un pic parfaitement gaussien	32
Figure 2.8: Comparaison entre les résolutions des deux détecteurs NaI et GeHF	> 33

Figure 3.1: La carte du Liban avec la carte de Baalbek-el hermel colorée noire	34
Figure 3.2.a: Choix de la zone d'échantillonnage	35
Figure 3.2.b: L'utilisation de moule lors de l'échantillonnage	36
Figure 3.3:La carte de l'échantillonnage effectué dans ce travail	37
Figure 3.4.a: Broyage et tamisage d'un échantillon	38
Figure 3.4.b: Broyage et tamisage d'un échantillon	38
Figure 3.5: L'échantillon est mis dans le récipient	39
Figure 3.6: Séchage quelque grams de l'échantillon	39
Figure 3.7: Lecture de l'échantillon dans le détecteur HPGe (détecteur vide sur la	
droite et avec l'échantillon sur la gauche)	40
Figure 3.8: Un détecteur GeHP utilisé dans la labo de CLEA.	41
Figure 3.9: Courbe d'étalonnage en énergie dans le système de programme	
Genie 2000	43
Figure 3.10: Source multi-gamma standard certifiée	43
Figure 3.11: Courbe d'étalonnage en énergie dans le système de programme	
Genie 2000	45
Figure 3.12: Courbe d'étalonnage d'efficacité	47
Figure 3.13.a: Carte de contrôle de qualité effectué sur le <sup>60</sup> Co dans la matrice de	
sable multi-gamma	49
Figure 3.13.b: Carte de contrôle de qualité effectué sur le <sup>137</sup> Cs dans la matrice de	
sable multi-gamma	49
Figure 3.13.c: Carte de contrôle de qualité effectué sur le <sup>241</sup> Am dans la matrice de	<b>;</b>
sable multi-gamma et résolu	50
Figure 3.14.a: Carte de contrôle de résolution à basse énergie effectué sur la source	е
ponctuelle <sup>152</sup> Eu	51
Figure 3.14.b: Carte de contrôle d'efficacité à haute énergie effectué sur la source	
ponctuelle <sup>152</sup> Eu	52

Figure 3.15: La surface de pic gaussienne
Figure 3.16: Identification des radionucléides
Figure 3.17: Définition de la limite de détection (l'axe vertical représente la fréquence
de l'observation d'un comptage particulier)
Figure 3.18: Etapes successives d'analyse d'un spectre
Figure 4.1: Concentration d'activité de <sup>238</sup> U avec une variation de la profondeur 68
Figure 4.2: Concentration d'activité de <sup>235</sup> U avec une variation de la profondeur 68
Figure 4.3: Concentration d'activité de <sup>232</sup> Th avec une variation de la profondeur 69
Figure 4.4: Concentration d'activité de <sup>226</sup> Ra avec une variation de la profondeur 69
Figure 4.5: Concentration d'activité de <sup>40</sup> K avec une variation de la profondeur 70
Figure 4.6: Diminution de la concentration d'activité du <sup>137</sup> Cs avec la profondeur 7
Figure 4.7: Cartes radioactives des l'Uranium-238 et le thorium-232 pour Baalbeck-El
Hermel

# Liste des tableaux

Tableau 1.1: Radionucléides primordiaux	7
Tableau 1.2: Radionucléides cosmogénique	8
Tableau 1.3: Radionucléides produits par l'homme	8
Tableau 1.4: Les 3 familles radioactives naturelles et la famille (4n+1) artific	ielle qui
a pu exister après la formation de la terre	9
Tableau 1.5: Radionucléides de l'écorce terrestre ne donnant pas de filiations	
radioactives	
Tableau 1.6: Les doses totales maximales pour les travailleurs sous rayonnen	nent
selon CIPR	22
Tableau 1.7: Les doses totales maximales pour le publique selon CIPR	22
Tableau 1.8: Les effets déterministes décrits pour des expositions à des rayon	inements
γ ou X en fonction de la dose d'irradiation	24
Tableau 3.1: Les radionucléides présent à la source standard multi-gamma	44
Tableau 3.2: Les radionucléides étudiés dans notre mémoire	56
Tableau 4.1: Coordonnées des sites d'échantillonnage	62
Tableau 4.2: Concentration d'activité des échantillons	63
Tableau 4.3: Comparaison des concentrations d'activité aux échantillons de s	ol en
Bq/kg obtenues dans le travail présent avec les pays voisins	66
Tableau 4.4: Résumé de la concentration de l'activité et comparaison avec le	
moyenne mondial	66
Tableau 4.5: Donnés de profil de profondeur	
Tableau 4.6: Concentration d'activité surfacique des radioéléments	72
Tableau 4.7: Dose équivalente, efficace et totale pour les radionucléides natu	rels
et artificiels	75

### Annexe A

# Lebanese Atomic Energy Commission National Council for Scientific Research Beirut, Lebanon

# NUCLIDE IDENTIFICATION REPORT Project title ......... 4225.CNF Spectrum [sd1] ....... Soil Na7le Bega3 Radioactive carte [sd2] ...... Density : 1.26 g/cm3 Type ..... test Quantity ..... 6.168E-001 Kg Dry Geometry ..... 500ml+adapt Acquisition date ..... 06.05.15 12:20:08 PM Live/Real time (s) ...... Pk search range (chn) .... 83972.20 83959.65 50 8192 sensitivity 3.00 Pk search done on ...... 07.05.15 11:41:07 AM Detector ..... DET.B Energy cal done on ...... 05.05.15 11:55:23 AM Eff cal done on ...... 07.04.14 9:06:36 AM Efficiency type ...... DUAL Ref Time (Sam date) ..... 03.05.15 9:00:00 PM NucLib Name ...... C:\GENIE2K\CAMFILES\Stdmo.NLB Title ......

Nuclide Name	Id Confidence	Energy (keV)	Yield (%)	Activity (Bq/Kg Dry )	
BE-7	0.999	477.60+	10.44	8.821E+000	5.356E-001
K-40	1.000	1460.82*	10.55	9.789E+001	3.400E+000
MN-54	0.872	834.84*	99.97	1,429E-001	3.791E-002
CS-137	1.000	661.66*	84.99	7.721E+000	2.314E-001
T1-208	0.999	583.19*	85.00	2.817E+000	1.162E-001
		860.56*	12.42	3.056E+000	3.530E-001
BI-212	0.998	727.33*	6.65	8.371E+000	7.345E-001
PB-212		238.63*	43.60	8.624E+000	3.231E-001
BI-214	1.000	609.31*	45.49	2.010E+001	
DI-SI4					5.828E-001
		1120.29*	14.91	2.182E+001	9.703E-001
No. 21.4		1764.49*	15.31	2.485E+001	1.233E+000
PB-214	1.000	295.22*	18.41	2.290E+001	7.488E-001
		351.93*	35.60	2.238E+001	6.1976 001
RA-226	0.987	186.21*	3.56	4.398E+001	2.166E+000
AC-228	1.000	338.32*	11.40	9.961E+000	6.138E-001
		911.20*	26.20	9.577E+000	5.275E-001
		968.96*	15.90	1.053E+001	6.441E-001
PA-234M	0.999	1001.03*	0.85	3.353E+001	5.062E+000
U-235	0.889	143.77*	10.94	2.054E+000	3.565E-001
		163.36	5.08	4.0040	3.5055-001
		185.72*	57.00	2.743E+000	1.351E-001
		205.32*	5.02	2.229E+000	6.300E-001
		WAC . C.	0.00	Z.ZZJETUUU	0.3006-001

<sup>\* =</sup> Energy line found in the spectrum. Energy Tolerance : 1.000 keV

Descr ...... Walid Tarraf

### Annexe B



24937 Avenue Tibbitts Valencia, California 91355

An Eckert & Ziegler Company

Tel 661-309-1010 Fax 661-257-8303

CERTIFICATE OF CALIBRATION MULTINUCLIDE STANDARD SOURCE

ECKERT & ZIEGLER/ISOTOPE PROD. EUROPE

P.O. No.: Catalog No.:

34141 EG-ML Source No.: Reference Date: 1-Jun-06

12:00 PST

Contained Radioactivity:

1.001 pCi 37.04

### Physical Description:

A. Capsule type:

B. Nature of active deposit: C. Active diameter/volume:

D. Backing E. Cover

500mL Marinelli beaker (533N)

Multinuclide distributed in 1.7 g/cc sand matrix Approximately 500mL (849.0 grams)

Plastic Plastic

Gamma-Ray Energy (keV)	Nuclide	Half-life	Branching Ratio (%)	Activity (μCi)	Gammas per second	Total Uncert.
60 88 122 159 320 392 514 662 898 1173 1333 1836	Am-241 Cd-109 Co-57 Te-123m Cr-51 Sn-113 Sr-85 Cs-137 Y-88 Co-60 Co-60 Y-88	432 17 ± 0.65 years 462 6 ± 0.7 days 271.79 ± 0.09 days 119.7 ± 0.1 days  • 27.706 ± 0.007 days 115.09 ± 0.04 days • 64.849 ± 0.004 days 30.17 ± 0.16 years 106.630 ± 0.025 days 5.272 ± 0.001 years 106.630 ± 0.025 days	36.0 3.63 85.6 84.0 9.86 64.9 98.4 85.1 94.0 99.86 99.98	0.02963 0.2721 0.01057 0.01331 0.3520 0.05389 0.06551 0.04558 0.1039 0.05466 0.05466	384.7 365.5 334.8 413.7 1284 1294 2385 1435 3614 2020 2022 3821	3.0 % 3.1 % 3.1 % 3.0 % 3.0 % 3.0 % 3.1 % 3.0 % 3.1 % 3.0 %

### Method of Calibration:

This source was prepared from weighed aliquots of solutions whose concentrations in µCi/g were determined by gamma spectrometry

### Notes

- See reverse side for leak test(s) performed on this source
- · IPL participates in a NIST measurement assurance program to establish and maintain implicit traceability for a number of nuclides, based on the blind assay (and later NIST certification) of Standard Reference Materials (as in NRC Regulatory Guide 4.15)
- Nuclear data was taken from IAEA-TECDOC-619, 1991
- Overall uncertainty is calculated at the 99% confidence level.
- This source has a working life of 1 year

Quality Contr

1195-11 IPL Ret No

ISO SORT CRRTISTED

Medical Imaging Laboratory

serve falbitta Valancia California 91 252

Industrial Gauging Laboratory

1800 North Esperane Street Burbank California 9550