

N° d'ordre :FS / UMBB / 2020



République Algérienne Démocratique et Populaire
الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique
وزارة التعليم العالي والبحث العلمي
Université M'Hamed Bougara- Boumerdes
جامعة أمحمد بوقرة- بومرداس

Faculté des Sciences
Département : chimie

Mémoire en vue de l'obtention du diplôme de master
Spécialité : Chimie de l'environnement

THEME

**Analyse de la radioactivité naturelle dans
les résidus des boues de forage**

Préparé par : AbderrazakNechaf

Soutenu le : 12 Novembre 2020

Membres du jury :

Nom & Prénom	Qualité
<i>HAMMADOU Souaad (MCB)</i>	Présidente
<i>IRINI SLIMANE Hassiba (MCB)</i>	Examinatrice
<i>Mme RABIANadia</i>	Encadreur
<i>Mme BENBELKACEM Ouarda (MCB)</i>	Co-encadreur

2019/2020

Dédicace

Pour votre amour, vos sacrifices, votre soutien et encouragements, je vous dédie mes chers parents ce modeste travail.

A ma chère femme Khadidja.

A mes chers fils Mohamed Anis et Mouadh.

À mes sœurs.

À mes frères.

A mon ami intime Fatah.

A mes amis Smail et Djafar.

Que Dieu les garde tous.

Nechaf Abderrazak

Remerciements

J'adresse mes plus vifs remerciements à mes encadrateurs Madame RABIA Nadia et Madame BENBELKACEM Ouarda, d'avoir accepté de m'encadrer et soutenu. Elles m'ont consacré beaucoup de temps, aussi bien sur le plan scientifique et technique que sur le plan rédaction du présent mémoire.

Ma profonde gratitude s'adresse aussi à mes enseignants pour la qualité de leurs cours et leur patience.

Je remercie également SEHAD Smail pour m'avoir encouragé durant toute cette période.

Je tiens à remercier MM TAIEB ERRAHMANI Djamel et TOUMERT Idir d'avoir accepté d'analyser mes échantillons.

Je tiens aussi à remercier Madame HAMMADOU Souaad, d'avoir accepté de présider ce jury.

Je remercie vivement Madame IRINI SLIMANE Hassiba, d'avoir accepté d'être membre de ce jury en tant qu'examinatrice.

Dans le souci de n'oublier personne, que tous ceux qui m'ont aidé de près ou de loin, par leurs conseils et soutien moral, trouvent ici l'expression de ma profonde gratitude.

Sommaire

Liste des abréviations

Liste des figures

Liste des Tableaux

Résumé

Introduction générale..... 1

Chapitre I : Généralité sur la radioactivité

I.1	Historique	3
I.2	Définition de la radioactivité	3
I.3	Origine de la radioactivité	3
I.3.1	Radioactivité naturelle	3
I.3.2	Radioactivité artificielle	4
I.4	Désintégration radioactive	4
I.4.1	Désintégration alpha (α)	4
I.4.2	Désintégration bêta	4
I.4.2.1	Désintégration bêta moins (β^-)	4
I.4.2.2	Désintégration bêta plus	4
I.4.2.3	Désintégration gamma (γ)	5
I.5	Loi de la décroissance radioactive.....	5
I.6	La période radioactive (T)	6
I.7	Activité	7
I.8	Interaction des rayonnements avec la matière.....	7
I.8.1	Rayonnements directement ionisants	8
I.8.2	Rayonnements indirectement ionisants.....	8
I.9	Détection de la radioactivité :	8
I.9.1	Les détecteurs	8

I.9.2	Mode de fonctionnement d'un détecteur	8
I.9.3	Caractéristiques d'un détecteur.....	9
I.10	Risques radiologiques des rayonnements ionisants.....	9
I.11	Radioprotection	9

Chapitre II :Les déchets radioactifs

II.1	Définition	10
II.2	Forme des déchets radioactifs	10
II.3	Classification des déchets radioactifs.....	10
II.3.1	Classification suivant les propriétés des déchets	10
II.3.1.1	Propriétés radioactives	10
II.3.1.2	Propriétés physico-chimiques	10
II.3.2	Classification de l'AIEA des déchets radioactifs.....	11
II.4	Gestion des déchets radioactifs.....	12
II.4.1	Etapas de gestion des déchets radioactifs.....	14
II.4.1.1	Prétraitement des déchets	14
II.4.1.2	Traitement des déchets radioactifs.....	14
II.4.1.3	Conditionnement.....	15
II.4.1.4	Entreposage	15
II.4.1.5	Stockage définitif.....	15
II.5	Déchets contenant de la radioactivité naturelle (NORM : Naturally Occurring Radioactive Materials)	15
II.5.1	Introduction	15
II.5.2	Origine des NORM.....	16
II.5.3	NORM dans les installations pétrolières et gazières	16
II.5.4	Résidus NORM.....	18
II.6	Techniques de la remédiation des sols.	19
II.6.1	Electro-remédiation.	19

II.6.2	Rinçage des sols.	19
II.6.3	Stabilisation.....	19
II.6.4	La vitrification	19
II.6.5	Phytoremédiation.	20
II.6.5.1	Mécanismes de phytoremédiation	20
II.6.5.2	Sélection de plantes pour la phytoremédiation	22
II.6.5.3	Avantages.....	22
II.6.5.4	Limites.....	22

Chapitre III :Matériels et méthodes

III.1	Introduction	23
III.2	Echantillonnage	23
III.3	Les lieux de prélèvement d'échantillons	23
III.4	Préparation des échantillons.....	25
III.4.1	Séchage	25
III.4.2	Tamisage	25
III.5	Préparation des échantillons pour analyse.....	25
III.5.1	Préparation d'échantillons pour analyse par FRX	26
III.5.2	Préparation d'échantillons pour analyse par spectrométrie gamma	26
III.5.3	Procédures d'analyse	26
III.5.3.1	Les conditions opératoires.....	27

Chapitre IV :Résultats et discussions

IV.1	Résultats de l'analyse minéralogique(FRX).....	28
IV.2	Résultats des analyses par spectrométrie gamma	31
Conclusion		32
Référence bibliographique		32
Annexes.....		

Liste des abréviations

NORM: Naturally Occurring Radioactive Materials

TENORM: Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Materials.

LGS : Low Gravity Solids

XRF : X-ray Fluorescence

CRNA : Centre de Recherche Nucléaire d'Alger

AIEA : Agence Internationale de l'Energie Atomique

Uma : Unité de masse atomique

PPM : Partie par million

MCA : Analyseur multicanaux.

UNSCEAR : United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation

Liste des figures

Figure 1 : Schéma de désintégration radioactive de Au-198	5
Figure 2 : courbe de désintégration radioactive	6
Figure 3 : Diagramme de la gestion des déchets radioactifs solides	13
Figure 4 : Transport de descendants d'U-238 dans la production de pétrole et de gaz.....	17
Figure 5 : Transport de descendants de Th-232 dans la production de pétrole et de gaz.....	18
Figure 6 : Modèle conceptuel montrant diverses techniques de phytoremédiation	21
Figure 7 : Résidus de boue de forage	23
Figure 8 : Bourbiers de stockage de LGS	24
Figure 9 : Bassin d'eau pour le forage	24
Figure 10 : Solidification des résidus de boue de forage	24
Figure 11 : Tamisage des échantillons	25
Figure 12 : Echantillons pour analyse FRX	26
Figure 13 : Conditionnement des échantillons pour spectrométrie gamma	26
Figure 14 : Spectre caractéristique de l'échantillon 10.....	30
Figure 15 : Spectre illustrant les pics des radioéléments.....	31
Figure 16 : Concentration du radium 226 dans les échantillons.....	32
Figure 17 : Concentrations de Ra-226 et Pb-210.....	33
Figure 18 : Concentration du Pb-210 dans les échantillons	34
Figure 19 : Concentration du K-40 dans les échantillons.....	34
Figure 20 : Schéma descriptive de la chaîne FRX.....	Annexe 1
Figure 21 : Schéma de la chaîne spectroscopie de fluorescence X.....	Annexe 1
Figure 22 : Chaîne de spectrométrie gamma.....	Annexe 2
Figure 23 : Schéma de principe d'une chaîne de spectrométrie gamma.....	Annexe 2
Figure 24 : Droite de calibration en énergie.....	Annexe 2
Figure 25 : Courbe d'étalonnage en efficacité.....	Annexe 2

Liste des Tableaux

Tableau 1: exemples de demi-vie de certains radioéléments	7
Tableau 2 : Classification des déchets radioactifs par l'AIEA.....	11
Tableau 3 : Nature et masse des échantillons.....	26
Tableau 4 : Concentrations des éléments chimiques dans les échantillons et le blanc	28
Tableau 5 : Principaux radioéléments naturels (NORM) identifiés.....	31
Tableau 6 : Activités spécifiques des radionucléides NORM.....	Annexe 3

ملخص

ينتج عن الطين المستخدم في حفر آبار النفط (طين الحفر)، أثناء العملية، بقايا قادمة من الأعماق والتي يمكن أن تحتوي على مواد مشعة طبيعياً، تعرف باسم NORM بتركيزات كبيرة. يتألف العمل الحالي، على توصيف معدني وإشعاعي لبقايا طين الحفر المستعملة في الصناعة البترولية والغازية الجزائرية. Ra-226 العنصر السائد للمواد المشعة الناتجة عن هذه الصناعة.

الكلمات الأساسية: طين الحفر، بقايا، مواد مشعة، NORM.

Résumé :

Les boues utilisées dans le forage de puits de pétrole (boues de forage) génèrent, au cours du procédé, des résidus provenant des profondeurs et qui peuvent contenir de la radioactivité naturelle, communément appelée NORM, à des concentrations significatives. Le présent travail consiste à la caractérisation minéralogique et radiologique des résidus de boues de forage utilisées dans l'industrie pétrolière et gazière Algérienne.

Mots clés : Boues de forage, Résidus, Radioactivité, NORM.

Abstract

The muds used in the oil and gas wells drilling (drilling muds) generate, during the process, residues coming from depths and containing natural radioactivity, commonly called NORM, at significant activity concentrations. The work carried out in this study consists, in mineralogical and radiological characterization of residues of drilling mud used in the Algerian oil industry.

Keywords: Drilling muds, Residues, Radioactivity, NORM.

Introduction générale

Introduction générale

L'environnement naturel de l'être humain est majoritairement radioactif. On estime, en effet, qu'environ 80% de toute l'exposition radioactive humaine provient du bruit de fond naturel. A cette radioactivité s'ajoute les sources de rayonnements que l'homme a créés. Ces sources représentent la radioactivité artificielle.

Qu'elle soit naturelle ou artificielle, la radioactivité est utilisée dans plusieurs domaines : recherche, médecine, industrie et production d'électricité. A l'instar des autres activités humaines, ces applications génèrent des sous-produits ou déchets radioactifs dont aucune utilisation n'est prévue et dont le rejet peut avoir des effets nocifs sur la santé de l'homme et l'environnement. Une gestion adéquate est, donc, nécessaire. Cette gestion passe par plusieurs étapes. Parmi celles-ci, la décontamination des matériaux, des équipements, des produits et des sols.

Certaines industries extractives telles que l'exploitation minière et l'exploitation pétrolière et gazière, ont le potentiel d'augmenter le risque d'exposition aux rayonnements, de l'homme et de l'environnement, en concentrant les quantités de radioactivité au-delà des niveaux du bruit de fond naturel.

Les éléments radioactifs (radioéléments ou radionucléides) impliqués dans ces industries sont communément appelés NORM (Naturally Occurring Radioactive Materials). Ils proviennent des chaînes naturelles de l'uranium (U-238 et U-235) et du thorium (Th-232) ainsi que le potassium-40 (K-40).

Dans l'industrie pétrolière et gazière et tout au long du procédé d'extraction (allant du forage des puits jusqu'à la production), les NORM se retrouvent principalement dans le dépôt qui s'accumule au niveau des équipements et des installations de surface avec des concentrations plus ou moins importantes. L'une des conséquences de la formation de ces dépôts est la production d'un volume important de déchets contenant des NORM, qui s'ils ne sont pas gérés comme tels, entraîneraient une contamination du sol avoisinant les installations pétrolières. Les vents, favoriseraient la propagation de cette contamination sur de larges étendues.

Le principal radioélément contenu dans ces déchets est le radium (Ra-226) et ses descendants (radon, plomb...etc.) qui proviennent de la chaîne radioactive naturelle de l'uranium-238.

Comme pour d'autres polluants, les méthodes physico-chimiques de décontamination des sols contaminés par les NORM, peuvent être appliquées. Cependant, ces technologies

d'ingénierie traditionnelles peuvent être non écologiques et trop coûteuses pour la restauration de la plupart des sites. L'assainissement et la restauration des sols ou sites contaminés nécessitent donc, une approche écologique et efficace pour la durabilité environnementale et pour la protection de la santé humaine. Pour cela, plusieurs études ont montré qu'il existe d'autres méthodes pouvant être des alternatives peu coûteuses. Ces méthodes sont :

- La bioremédiation microbienne qui utilise des micro-organismes (bactéries, algues et les champignons) pour dégrader et transformer les composés dangereux du sol et de l'eau ;

Dans le cadre de ce mémoire, un exemple de déchets contenant des NORM sera étudié, en l'occurrence des déchets provenant de différents puits de forage gazier du sud algérien. L'étude consiste à déterminer les radioéléments (principalement le Ra-226) contenus dans ces déchets et mesurer leur radioactivité.

Une analyse minéralogique des éléments chimiques dans ces déchets, sera réalisée par la technique de la Fluorescence à Rayons X (FRX). La technique de Spectrométrie Gamma à Germanium Hyper Pur (Ge(HP)) sera utilisée pour la mesure de la radioactivité.

Ce mémoire comprend deux parties, l'une bibliographique et l'autre expérimentale.

- La partie bibliographique comprend trois chapitres dont le premier introduit des généralités sur la radioactivité, le deuxième chapitre présente les déchets radioactifs, particulièrement les déchets contenant les NORM et enfin, un troisième chapitre qui concerne des notions sur les différentes méthodes de remédiation.

- Dans la partie expérimentale, les échantillons subissent d'abord, une préparation avant de subir des analyses par les techniques présentées ci-dessus.

Les échantillons de déchets utilisés, proviennent des puits de forage d'un champ gazier au sud Algérien. Le travail de ce mémoire a été réalisé au laboratoire du département des déchets radioactifs du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA).

L'analyse par spectrométrie gamma des échantillons a été réalisée au laboratoire de l'environnement du CRNA.

Chapitre I :

Généralités sur la radioactivité

I.1 Historique

La radioactivité a été découverte en 1896 par le Français H. Becquerel. La découverte s'est produite alors qu'il expérimentait la phosphorescence dans les composés d'uranium [1]. En 1919, Rutherford a démontré la première production artificielle de l'isotope stable (oxygène-17) en bombardant le noyau d'azote-14 avec des particules alpha.

En 1934, Frédéric Joliet et Irene Joliet-Curie réalisent la première production artificielle de radio-isotopes en bombardant divers éléments tels que : Be, B et Mg avec des particules alpha à partir de polonium. [2]

I.2 Définition de la radioactivité

La radioactivité est une caractéristique des noyaux d'atomes. Les noyaux et les atomes, subissent des changements spontanés appelés transformations radioactives ou nucléaires ainsi que des désintégrations. L'énergie libérée par transformation nucléaire et emportée sous forme de rayonnement nucléaire (Alpha, Béta et Neutrons, accompagnées émission de rayonnements X et Gamma). Généralement, cette énergie est 10³ à 10⁶ fois supérieure à celle libérée par l'atome impliqué dans des réactions chimiques.

I.3 Origine de la radioactivité

I.3.1 Radioactivité naturelle

Lors de la formation de la terre, il y a environ 5 milliards d'années, la matière comprenait des atomes stables et instables. Mais depuis, la majorité des atomes instables se sont désintégrés par radioactivité et ont fini par se transformer en nucléides stables. Cependant, il existe encore des radionucléides naturels ayant une très longue période radioactive tels : le thorium-232 (Th-232) (14 milliards d'années), l'uranium-238 (U-238) (4,5 milliards d'années) et le potassium-40 (K-40) (1,3 milliard d'années) qui n'ont pas encore eu le temps de se désintégrer totalement.

Leurs descendants, sont en permanence régénérés par une chaîne de désintégrations partant soit de l'U-238 soit de celle du Th-232. Le radium-226 (Ra-226) descendant de l'U-238, par exemple, se transforme lentement, en un gaz radioactif, le radon 222 (Rn-222). Ces radionucléides naturels sont présents sur toute la planète : dans l'atmosphère (carbone 14 (C-14), Rn-222 etc.), la croûte terrestre (les trois chaînes), notre alimentation et le corps humain (potassium 40).[3]

I.3.2 Radioactivité artificielle

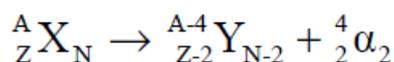
La radioactivité artificielle est soit produite directement ou indirectement par l'homme. La production de radionucléides artificiels se fait au moyen d'un accélérateur de particules ou d'un réacteur nucléaire. Ces radionucléides permettent de nombreuses applications. Certains radionucléides tels le cobalt 60 (Co-60), iridium 192 (I-192), peuvent être utilisés en médecine (radiothérapie ou radiodiagnostic), et dans les applications industrielles. Dans production indirecte, les radionucléides sont créés lors du fonctionnement des réacteurs nucléaires, par fission nucléaire. Les principaux radioéléments produits sont le strontium 90 (Sr-90) et le césium 137 (Cs-137). [4]

I.4 Désintégration radioactive

Une désintégration radioactive se produit lors du retour d'un noyau d'atome à la stabilité, et ce par trois types d'émission : alpha (α), bêta (β) et gamma (γ).

I.4.1 Désintégration alpha (α)

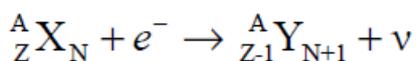
La désintégration alpha (α) concerne les radionucléides trop chargés à la fois en protons et en neutrons. L'émission alpha est un noyau d'hélium avec un numéro atomique de 4 (2 protons et 2 neutrons,) ayant une très grande énergie. Le nucléide initial se transmute en isotope d'un autre élément chimique plus léger. Par exemple, l'uranium 238 se désintègre par émission radioactive α et se transmute en thorium 234 (Th-234).



I.4.2 Désintégration bêta

I.4.2.1 Désintégration bêta moins (β^-)

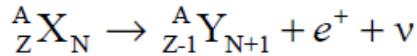
La désintégration bêta moins (β^-) est un électron, chargé négativement. Certains atomes, dont les noyaux sont trop chargés en neutrons, émettent un rayonnement β^- : un des neutrons se transforme spontanément en un proton plus un électron qui est éjecté avec une grande énergie. Le nucléide initial se transforme en un autre isotope d'un autre élément chimique. Le Sr-90, par exemple, se désintègre par émission β^- et se transforme en yttrium 90 (Y-90). [5]



I.4.2.2 Désintégration bêta plus

La désintégration bêta + (β^+) est un positon. Certains atomes, dont les noyaux sont trop chargés en protons, émettent un rayonnement (β^+) : un des protons se transforme

spontanément en un neutron plus un positon qui est éjecté avec une grande énergie. Ainsi, l'atome s'est transformé en un autre élément chimique. L'oxygène 15 (O-15), par exemple, se désintègre par émission β^+ et se transforme en azote 15 (N-15).



I.4.2.3 Désintégration gamma (γ)

Le rayonnement gamma est une onde électromagnétique comme la lumière visible ou les rayons X, mais beaucoup plus énergétique. Ce rayonnement suit souvent une désintégration bêta voire alpha. Après l'émission de la particule alpha ou bêta, le noyau résiduel est encore excité car ses protons et ses neutrons n'ont pas trouvé leur équilibre. Il se libère alors rapidement du trop-plein d'énergie par émission d'un ou plusieurs rayonnements gamma. [6]

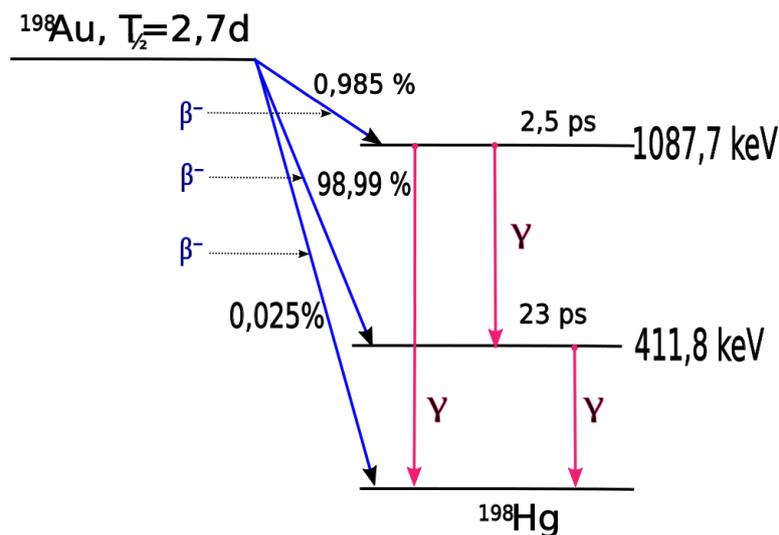
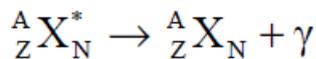


Figure 1 : Schéma de désintégration radioactive de Au-198

I.5 Loi de la décroissance radioactive

La quantité d'un radionucléide diminue avec le temps du fait de la désintégration radioactive progressive de ses noyaux. Ce phénomène aléatoire et spontané.

Cette décroissance radioactive suit une loi exponentielle telle que :

$$dN(t) = -\lambda N(t) dt \quad (1)$$

En intégrant l'équation (1), on obtient le nombre de noyaux présents à l'instant t, soit :

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

Où :

N_0 : Nombre d'atomes à $t=0$;

$N(t)$: Nombre d'atomes à l'instant t ;

λ : Constante radioactive du corps ; elle représente la probabilité de désintégration d'un atome par unité de temps (s^{-1})

I.6 La période radioactive (T)

La période radioactive (T) est le temps au bout duquel la moitié des atomes sont désintégrés. C'est une grandeur caractéristique de chaque radioélément. Elle varie de 10^{15} ans à 10^{-6} secondes. Le tableau n°1 illustre quelques exemples de période radioactive.

D'après la relation de décroissance radioactive (2), on a :

$$\frac{N}{N_0} = \frac{1}{2}$$

$$e^{-\lambda t} = \frac{1}{2}$$

D'où :
$$T = \frac{\ln 2}{\lambda}$$

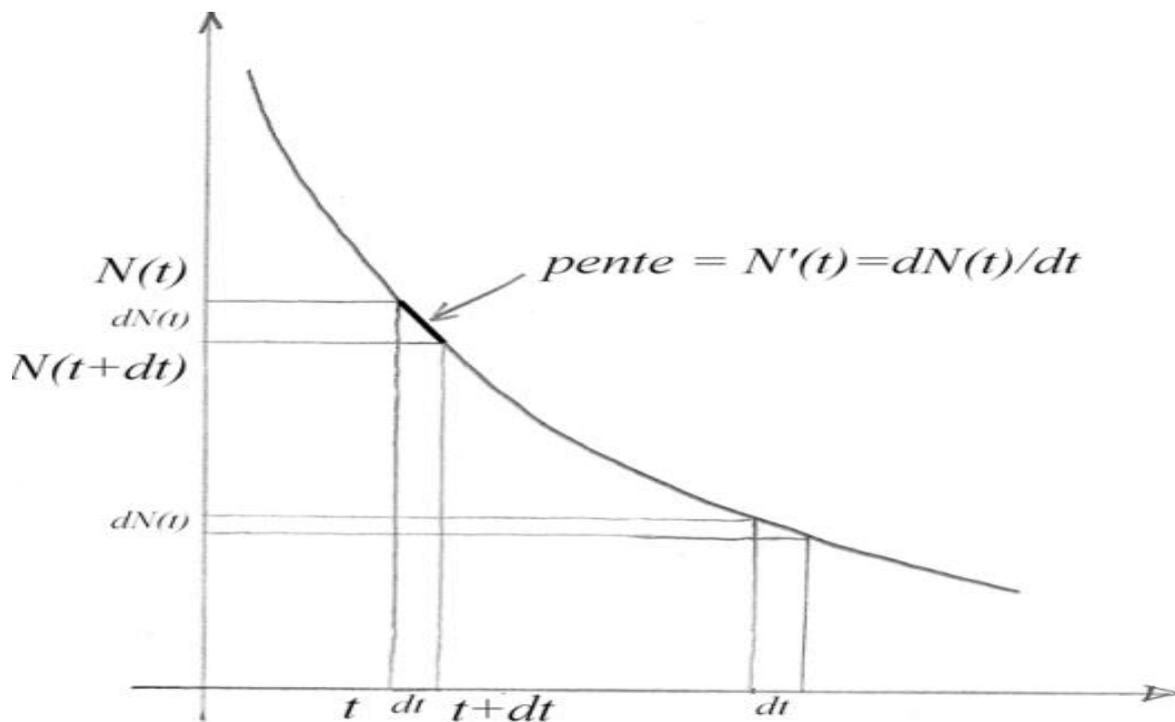


Figure 2 : courbe de désintégration radioactive

Tableau 1: exemples de demi-vie de certains radioéléments

Radionucléide	Période	Radionucléide	Période
Cobalt 60	5,2 ans	Radium 226	1 600 ans
Tritium	12,2 ans	Carbone 14	5 730 ans
Strontium 90	28,1 ans	Plutonium 239	24 110 ans
Césium 137	30 ans	Iode 129	15 700 000 ans
Américium 241	432 ans	Uranium 238	4 470 000 000 ans

I.7 Activité

L'activité A d'un élément radioactif à un instant t est la vitesse de désintégration à cet instant :

$$A(t) = - \frac{dN(t)}{dt} \tag{3}$$

En remplaçant (3) dans la relation (2), on obtient :

$$A(t) = A_0 e^{-\lambda t} \tag{4}$$

Unités de mesure de l'activité

- *Becquerel (Bq)* :Un becquerel est l'activité d'un noyau qui subit une transformation par seconde : 1 Bq = 1dps (désintégration par seconde).

- *Curie (Ci)* :Le Curie est l'ancienne unité de l'activité, encore utilisée. Elle représente l'activité d'un gramme de Ra-226.

$$1 \text{ Ci} = 3.7 \cdot 10^{10} \text{ Bq}$$

I.8 Interaction des rayonnements avec la matière

Lorsqu'un rayonnement (particules en mouvement ou rayonnement électromagnétique) traverse un milieu matériel, il peut interagir avec les atomes du milieu en leur transférant de l'énergie.

Les rayonnements, suivant leur nature, sont classés en différentes catégories. On dit qu'un rayonnement particulaire ou électromagnétique est ionisant lorsqu'il est susceptible d'arracher des électrons à la matière. Pour cela, il est nécessaire que l'énergie individuelle d'un photon ou cinétique des particules soit supérieure à l'énergie de liaison minimale des électrons du milieu.

Les rayonnements ionisants sont classés en deux catégories :

I.8.1 Rayonnements directement ionisants

Ils sont constitués de particules chargées, tels les électrons (β^+ , β^-), les protons, les deutons et les particules α des ions lourds. Ils délivrent directement à la matière leur énergie, en provoquant son ionisation par le jeu des forces coulombiennes s'exerçant entre elles et les atomes du milieu.

I.8.2 Rayonnements indirectement ionisants

Ce sont des rayonnements électromagnétiques (γ ou X) en mouvement, électriquement neutres, susceptibles de transférer une importante fraction ou la totalité de leur énergie en une seule interaction à des particules chargées. Ce sont des particules secondaires qui ionisent le milieu. L'interaction de ces rayonnements s'effectue principalement par trois processus : effet *Compton*, effet *photoélectrique* et effet de *matérialisation* (création de paires (électron-positron)).

I.9 Détection de la radioactivité :

I.9.1 Les détecteurs

La détection de la radioactivité est basée essentiellement sur le phénomène d'ionisation qui permet de détecter facilement le passage de particules dans la matière (interaction rayonnement-matière).

Depuis le premier écran fluorescent qui a permis à Röntgen en 1895 d'observer indirectement les rayons X, de nombreux détecteurs de différents types : gazeux, scintillateurs liquide ou solide et semi-conducteurs, ont été conçus pour permettre d'observer les différents rayonnements de la radioactivité naturelle ou artificielle.

Suivant l'objectif visé, un détecteur peut avoir une ou plusieurs fonctions :

- Mettre en évidence un « point chaud » de radioactivité dans l'environnement ;
- Mesurer précisément l'activité d'une source ou d'un échantillon ;
Mesurer l'énergie d'un rayonnement et identifier le noyau radioactif émetteur ;
- Identifier la nature du rayonnement (par la mesure de sa masse et de sa charge par exemple).

I.9.2 Mode de fonctionnement d'un détecteur

Quel que soit le mode de fonctionnement d'un détecteur et donc le principe sur lequel s'appuie la détection des rayonnements, il est toujours constitué de même éléments :

- Un capteur au niveau duquel le rayonnement interagit avec la matière ;

- Un système d'amplification qui met en forme et amplifie le signal produit par la sonde ;
- Eventuellement un système de traitement du signal ;
- Un système d'affichage qui indique :
 1. Un flux de particules : le compteur ;
 2. L'énergie des particules : le spectromètre ;
 3. La dose absorbée ou le débit de dose absorbée : le dosimètre ou le débitmètre.

I.9.3 Caractéristiques d'un détecteur

Dans chaque cas, il faut que le détecteur possède des caractéristiques bien adaptées, parmi lesquelles on peut citer :

- une grande efficacité de détection.
- une bonne résolution en énergie (capacité à distinguer deux rayonnements d'énergies très voisines).
- un temps de réponse rapide.
- un bruit de fond faible.

I.10 Risques radiologiques des rayonnements ionisants

L'exposition aux rayonnements ionisants peut être externe (source à distance ou au contact) et/ou interne (ingestion, inhalation ou passage percutané de substances radioactives). Ces rayonnements peuvent provoquer des effets sur la matière vivante. Ces effets peuvent altérer les tissus à court terme (effets déterministes) ou à long terme (risque de cancer) (effets stochastiques).

I.11 Radioprotection

La radioprotection consiste à évaluer les risques sanitaires liés à l'exposition aux rayonnements ionisants et si nécessaire, à mettre en œuvre des mesures de protection et de prévention destinées à limiter ces risques.

Chapitre II :

Les déchets radioactifs

II.1 Définition

L'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA) définit les déchets radioactifs comme « des matières contenant des radionucléides ou contaminées par des radionucléides dont la concentration ou l'activité sont supérieures aux niveaux de libération fixés par l'organisme de réglementation et pour lesquelles on ne prévoit pas d'utilisation ». [8]

II.2 Forme des déchets radioactifs

Les déchets radioactifs se présentent sous trois formes différentes :

- Forme solide ;
- Forme liquide ;
- Forme gazeuse.

Origines des déchets radioactifs

La plupart des déchets radioactifs des activités civiles découlent de la production électronucléaire, néanmoins un large éventail d'autres activités dont la médecine, l'agriculture, la recherche, l'industrie et l'enseignement utilisent des radio-isotopes, produisent des déchets radioactifs.

II.3 Classification des déchets radioactifs

Les déchets radioactifs sont classés suivant plusieurs critères [9]

II.3.1 Classification suivant les propriétés des déchets

II.3.1.1 Propriétés radioactives

On distingue quatre propriétés radioactives qui sont :

- L'activité ;
- Le demi de vie ;
- Le type de rayonnement (α , β , γ) ;
- Le débit de dose.

II.3.1.2 Propriétés physico-chimiques

Liquide

- Organique (huiles, solvant, ...etc.)
- Aqueux.

Solide

- Combustibles ;

- Non combustibles ;
- Compactables ;
- Non compactable ;
- Putrescible (carcasses d'animaux).

Gaz

- Particule ;
- Aérosols.

II.3.2 Classification de l'AIEA des déchets radioactifs

La classification des déchets radioactifs selon l'Agence International de l'Energie Atomique est donnée dans le tableau n° 2[30].

Tableau 2 : Classification des déchets radioactifs par l'AIEA

Nature	Catégorie	Activité spécifique Ci/m ³
Liquide	Faible activité	
	1	$A \leq 10^{-6}$
	2	$10^{-6} \leq A \leq 10^{-3}$
	3	$10^{-3} \leq A \leq 10^{-1}$
	Moyenne activité	
4	$10^{-1} \leq A \leq 10^4$	
	Haute activité	
	5	$A > 10^4$
Gaz	1	$A \leq 10^{-10}$
	2	$10^{-1} \leq A \leq 10^{-6}$
	3	$A > 10^{-6}$
		Débit de dose (R/h)
Solide	Faible activité	
	1	$D \leq 0.2$
	Moyenne activité	
2	$0.2 \leq D \leq 2$	
	Haute activité	

	3 Emetteurs α	D > 2
	4	Emetteur α

II.4 Gestion des déchets radioactifs

La découverte puis l'utilisation de la radioactivité dans de nombreux secteurs d'activités a entraîné la production de déchets radioactifs. De part, leurs propriétés radioactives, ils peuvent présenter des risques pour la santé humaine et pour l'environnement. Pour ces raisons, les déchets nécessitent une gestion adaptée. [10]

La gestion des déchets radioactifs obéit aux principes suivants :

- Produire le moins possible de déchets ;
- Réduire autant que possible leur dangerosité ;
- Prendre en compte les spécificités de chaque catégorie de déchets et choisir des dispositions qui minimisent les charges pour les générations futures (surveillance et maintenance). La gestion des déchets radioactifs correspond à une série d'étapes :

- Le prétraitement ;
- Le traitement ;
- Le conditionnement ;
- L'entreposage ;
- Le stockage définitif ;

La gestion de ces déchets est représentée par le diagramme ci-dessous.

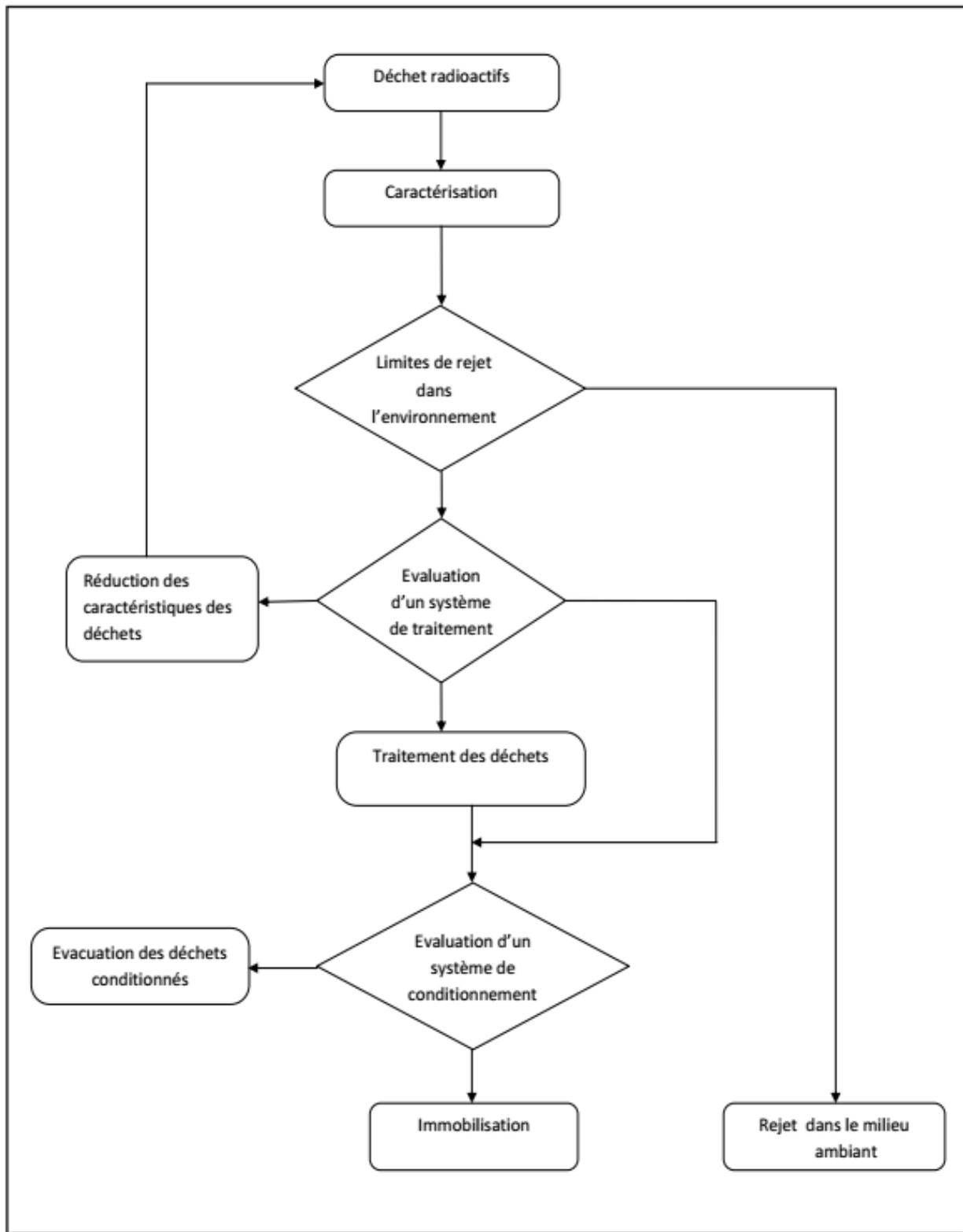


Figure 3 : Diagramme de la gestion des déchets radioactifs solides

II.4.1 Etapes de gestion des déchets radioactifs**II.4.1.1 Prétraitement des déchets**

Le prétraitement est défini comme une étape par laquelle doivent passer les déchets avant les opérations de traitement, conditionnement ou stockage définitif [11].

Les objectifs du prétraitement sont :

- La séparation des déchets en actifs et non actifs ;
- Conversion des déchets en une forme convenable pour le traitement, le conditionnement ou l'évacuation ;
- La conversion des déchets pour le recyclage. Les principales opérations du prétraitement des déchets radioactifs sont :

♣ **Collecte et tri** : Les opérations de collecte et de tri consistent en la réception des déchets à partir de leur lieu de génération et leur séparation selon :

- Les caractéristiques physiques et chimiques des déchets ;
- Le type et la demi-vie de l'activité ;
- La concentration de l'activité ;
- Les spécifications applicables aux voies d'évacuation.

II.4.1.2 Traitement des déchets radioactifs

Les caractéristiques et les propriétés physico-chimiques de déchets radioactifs déterminent le choix de la technique de traitement. L'objectif du traitement est d'isoler les contaminants radioactifs de l'environnement ou réduire leur quantité à des niveaux qui permettent leur rejet sûr, suivant les normes internationales. Il repose sur les principes suivant : la réduction de volume, l'extraction des radionucléides et la modification de la composition. Les déchets radioactifs qu'ils soient liquides ou solides peuvent être concernés par les opérations de traitement [12].

II.4.1.2.1 Traitement des effluents liquides

Les principaux procédés de traitement d'effluents liquides sont :

- La précipitation chimique ;
- L'échange ionique ;
- L'évaporation.

D'autres procédés sont :

- Procédés à membranes ;
- Procédés électriques.

II.4.1.2.2 Traitement des déchets solides

- Compactage ;
- Incinération.

II.4.1.3 Conditionnement

Le conditionnement des déchets radioactifs comprend des opérations telles que l'immobilisation et l'emballage. Il a pour but de produire une forme de déchet solide emballée compatible avec l'option retenue pour le stockage définitif et satisfaisant aux exigences de transport et d'entreposage [13].

II.4.1.4 Entreposage

L'entreposage est une étape provisoire. Il peut intervenir entre et pendant les étapes de gestion. Les déchets radioactifs solides ou liquides peuvent être entreposés dans l'attente d'un prétraitement ou après un traitement ou conditionnement.

II.4.1.5 Stockage définitif

Le stockage définitif implique la faculté de récupérer les déchets aisément. Les installations de stockage des déchets radioactifs doivent être conçues de manière à éviter l'exposition de l'homme aux rayonnements et à garantir le confinement physique. Il est nécessaire de procéder à une surveillance continue pour s'assurer que ces deux conditions sont satisfaites.

II.5 Déchets contenant de la radioactivité naturelle (NORM : Naturally Occurring Radioactive Materials)**II.5.1 Introduction**

La quasi-totalité des roches, des sols, et des eaux contiennent naturellement quantités de radioéléments tel que l'uranium, le thorium, le radium, les radio-isotopes du potassium, et leurs descendants.

Ces matériaux contenant des radionucléides présents naturellement dans la croûte terrestre sont appelé **NORM** qui est l'acronyme de «**N**aturally **O**ccurring **R**adioactive **M**aterials». Les faibles concentrations en radionucléides de ces NORM et leur isolement dans des formations géologiques profondes font que, dans leur état naturel, ces matériaux sont inoffensifs pour l'homme et son environnement.

Lors des activités humaines d'exploitation de ces matériaux ou NORM comme matières premières dans divers secteurs industriels, la radioactivité se trouve concentrée dans les produits et/ou les résidus.

Ces produits ou résidus sont appelés **TENORM** qui est l'acronyme de «Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Materials». On définit les TENORM comme étant tout matériau naturellement radioactif dont la concentration en radionucléides ou le risque potentiel d'exposition de l'homme ont été augmenté à des niveaux supérieurs à ceux rencontrés à l'état naturel. [14] Parmi ces activités on peut citer, l'extraction et le traitement des minerais, la production de gaz et de pétrole, les industries de céramiques réfractaires et abrasifs, l'industrie des phosphates et des engrais, les eaux (thermales, minérales et usées), les matériaux de construction (ciment, carrière, briques,..) et la récupération des métaux.

II.5.2 Origine des NORM

Les activités technologiques qui peuvent concentrer les NORM sont les industries d'extraction et de production.

Les principales industries extractives touchées par les NORM sont :

- Industrie pétrolière et gazière ;
- Industrie de phosphate ;
- Installation de traitement des eaux ;
- Extraction de charbon ;
- Extraction et traitement des métaux.

II.5.3 NORM dans les installations pétrolières et gazières

Au cours des années 80, des concentrations élevées de NORM ont été identifiées dans les équipements de production du pétrole et du gaz en mer du Nord et au sud des États-Unis. Au cours du processus d'extraction du pétrole et de gaz, et sous l'effet des changements de température et de pression les NORM remontent à la surface et s'accumulent sous forme de boues et de dépôts de tartre sur différents équipements. Les dépôts sont solides contenant des sulfates et/ou des carbonates de calcium, de baryum et de strontium. Leur formation est due, principalement à l'incompatibilité des eaux de formation et de production. Les principaux radionucléides présents dans boues et dépôts sont les isotopes du radium et le gaz radon-222 descendant du radium-226. [15]

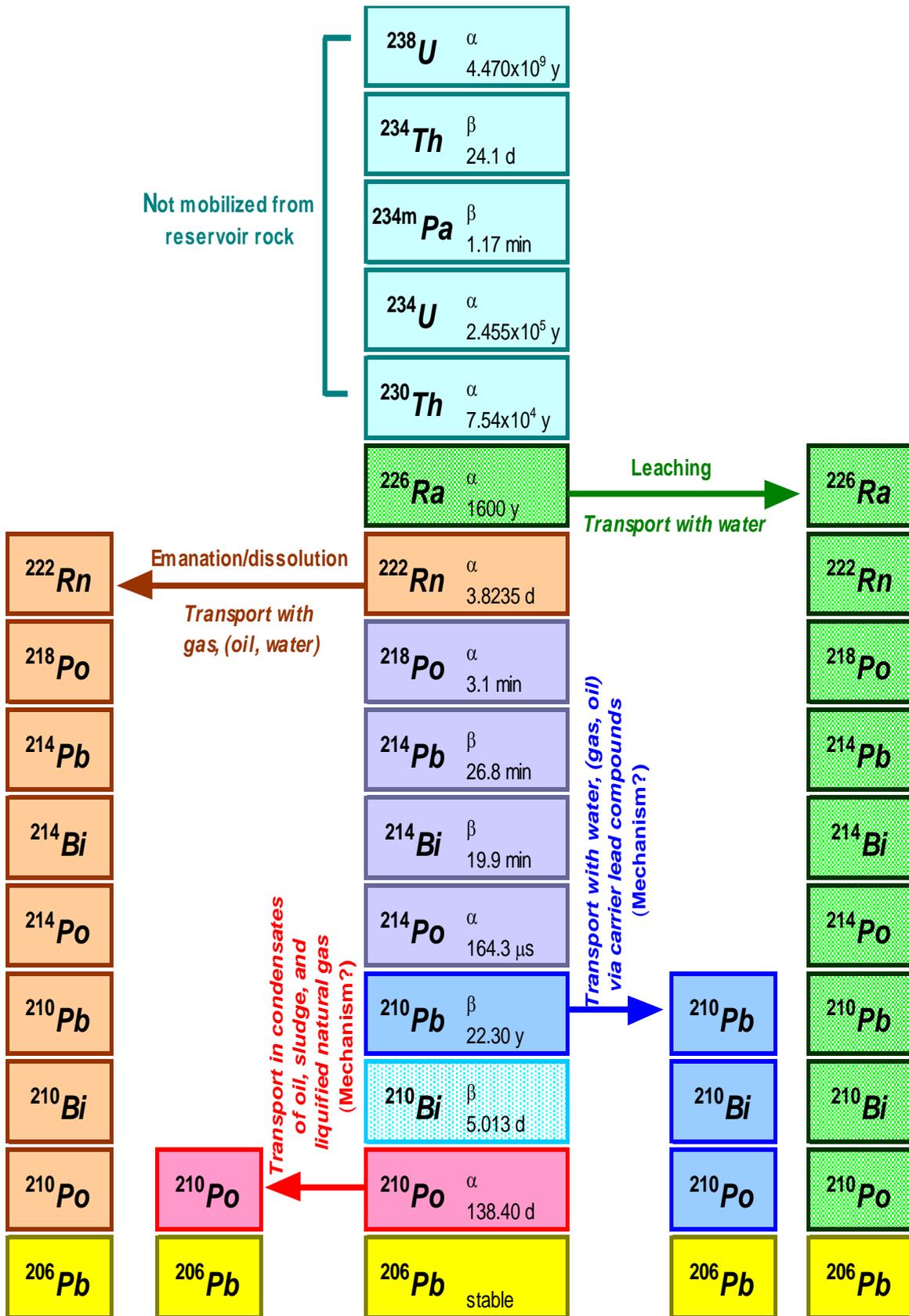


Figure 4 : Transport de descendants d'U-238 dans la production de pétrole et de gaz

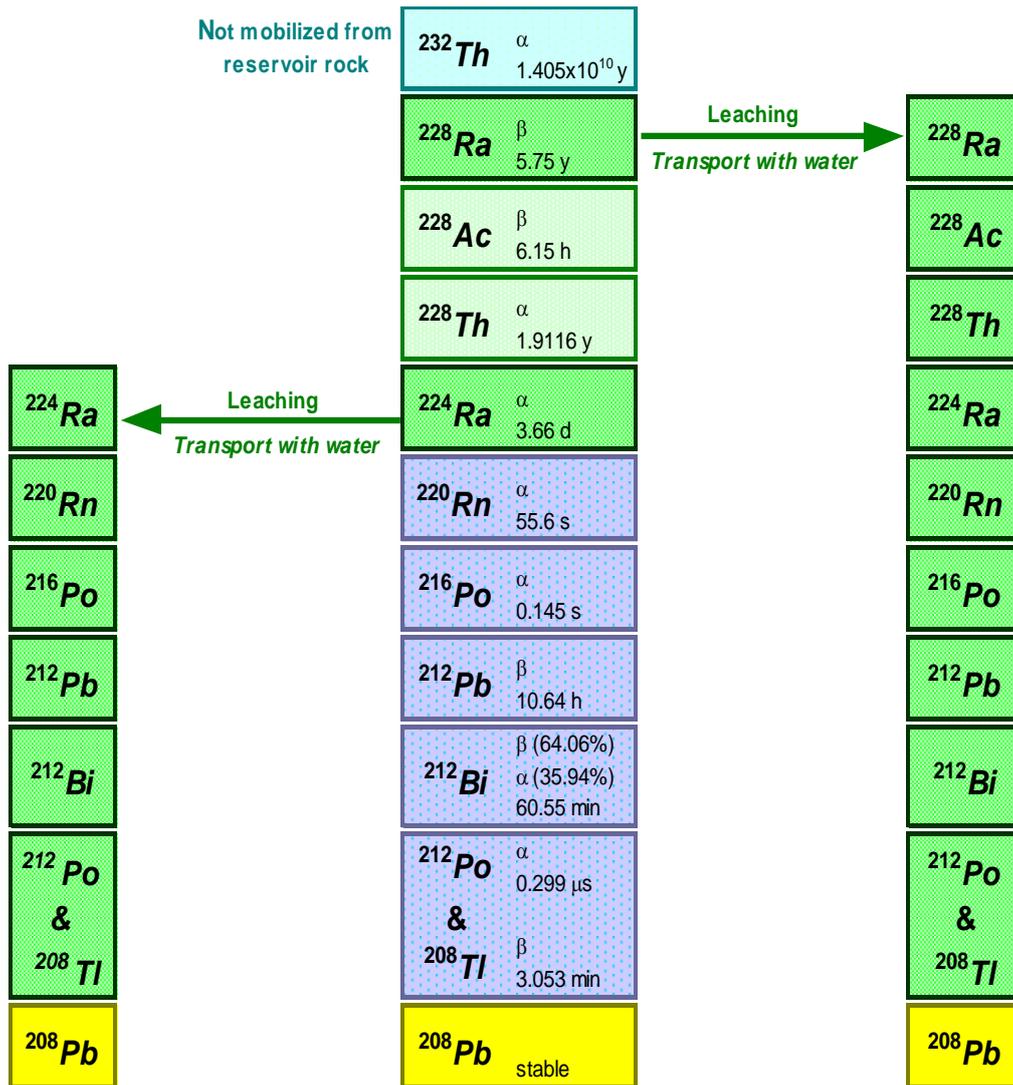


Figure 5 : Transport de descendants de Th-232 dans la production de pétrole et de gaz

II.5.4 Résidus NORM

L'industrie pétrolière et gazière génère différents résidus dont les principaux sont :

1. Boues retirées des tuyaux, des bacs et des réservoirs ;
2. Dépôt solide en suspension dans l'eau ;
3. Liquides contenant du tartre dissous et des produits chimiques ;
4. Dépôts solides récupérés des processus de décontamination ;
5. Filtres utilisés pour éliminer les particules en suspension dans l'air ;
6. Poussières de fumée et effluents gazeux (contenant les radionucléides volatils).

II.6 Techniques de la remédiation des sols.

Les sites contaminés nécessitent des procédures particulières pour restaurer l'aspect naturel du sol.

II.6.1 Electro-remédiation.

Le principe de ce procédé réside sur l'attraction de particules chargées dans le sol. Deux électrodes, une cathode et une anode sont insérées dans le sol contaminé. Un courant électrique y est appliqué et traverse le sol. Le champ magnétique généré propulse les métaux lourds présents sous forme ionique à travers les électrodes respectives. Arrivées aux électrodes, les particules métalliques sont extraites par adsorption sur les électrodes elles-mêmes ou par une résine échangeuse d'ions [16].

II.6.2 Rinçage des sols.

Le rinçage des sols est une technique de remédiation chimique appliquée in situ. Elle est basée sur l'extraction des métaux lourds par l'injection d'un fluide dans le sol contaminé. Le fluide extracteur est pompé à la surface. Il contient ainsi les contaminants absorbés. Le rinçage des sols est appliqué pour tous types de contaminants mais seulement utilisé pour des sols perméables qui facilitent la pénétration du fluide [16].

II.6.3 Stabilisation.

La technique par stabilisation est la réduction de la toxicité, la mobilité et la solubilité du contaminant pour minimiser son risque de propagation aux alentours. Un exemple de technique de stabilisation est le mélange d'asphalte. Cette technique chimique est utilisée pour le traitement des contaminants d'hydrocarbures. Il s'agit d'ajouter à un sol contenant du pétrole, un mélange de bitume chaud. La solution résultante forme un agrégat qui est ensuite traité pour extraire les contaminants du sol [16].

II.6.4 La vitrification

La vitrification est une technique qui implique l'application de hautes températures (1600-2000C°), pour faire fondre le sol et ses polluants, dans le but de bloquer la migration des composés nocifs vers des zones non polluées. La vitrification des polluants du sol s'effectue selon trois méthodes différentes [16]:

- Méthode thermique: utilisation de la chaleur d'une source externe avec un réacteur.

- Méthode électrique: insertion d'électrodes en graphite pour fournir de la chaleur sous forme d'une énergie électrique.

- Méthode de plasma: très favorable pour atteindre des températures élevées à environ 5000C°

II.6.5 Phytoremédiation.

La phytoremédiation est définie comme l'utilisation de végétaux pour extraire, stabiliser ou dégrader des substances polluantes.

Cette technique peut être appliquée à des métaux lourds, à des radioéléments ou à des polluants organiques présents dans le sol ou dans l'eau.

Quelquefois, des micro-organismes rhizosphériques ou des produits chimiques (ligands chélateurs) sont utilisés pour augmenter la biodisponibilité et de l'absorption des polluants sur la base des capacités naturelles des plantes.

II.6.5.1 Mécanismes de phytoremédiation

La phytoremédiation regroupe plusieurs techniques selon le type d'action des plantes, la nature du milieu contaminé et la nature des contaminants.

II.6.5.1.1 Phytoextraction

La phytoextraction est l'absorption de contaminants des sols ou des eaux par les racines des plantes et leur translocation vers les parties aériennes. Ces dernières peuvent ensuite être récoltées, puis traitées. Dans le cas des métaux, par exemples, ils peuvent être récupérés et réutilisés à but économique (*le phytomining*).

Certaines plantes sont naturellement capables d'accumuler de fortes teneurs en contaminants : ce sont des plantes accumulatrices ou hyper accumulatrices. [17]

II.6.5.1.2 Phytostabilisation

La phytostabilisation est l'immobilisation d'un contaminant du sol par adsorption sur les racines, l'absorption et l'accumulation par les racines, ou la précipitation dans la zone racinaire. Cette technique est utilisée pour réduire la mobilité et la biodisponibilité des polluants dans l'environnement, empêchant ainsi leur lessivage dans les eaux souterraines et leur entrée dans la chaîne alimentaire.

II.6.5.1.3 Phytovolatilisation

La phytovolatilisation est l'absorption des polluants volatils (Hg, Se) du sol par les plantes et leur conversion en forme gazeuse puis leur rejet subséquent dans l'atmosphère par évapotranspiration.

II.6.5.1.4 Phytodégradation

La phytodégradation fait référence à la dégradation ou transformation microbienne des polluants organiques toxiques en substances moins toxiques dans la zone racinaire (rhizosphère). Cette technique se rapproche plus de la bioremédiation assistée par les plantes.[17]

II.6.5.1.5 Phytofiltration

La Phytofiltration est également appelée *phytoépuration*. La pytofiltration est l'élimination, des polluants des zones humides par les plantes aquatiques. La phytofiltration peut être une rhizofiltration (utilisation de racines de plantes) ou blastofiltration (utilisation de semis) ou caulofiltration (utilisation de pousses). Dans cette technique, les systèmes racinaires (rhizofiltration) favorisent la dégradation et la minéralisation de composés organiques. Ils absorbent, précipitent et concentrent les polluants[18].

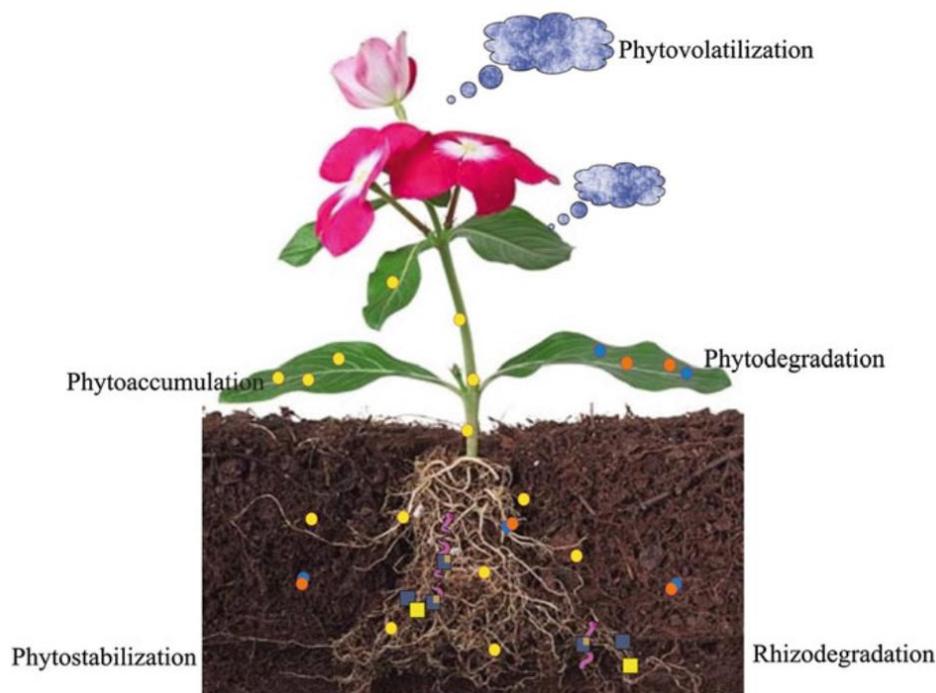


Figure 6 : Modèle conceptuel montrant diverses techniques de phytoremédiation

II.6.5.2 Sélection de plantes pour la phytoremédiation

Le principal objectif du procédé de sélection est de choisir une espèce de plantes avec des caractéristiques de croissance sous des conditions du site qui satisfait aux objectifs de la phytoremédiation. Le processus de cette sélection passe par certaines étapes :

1. Identifier la technologie de phytoremédiation et les objectifs de réhabilitation
2. Recueillir des informations sur le site.
3. Identifier les critères importants pour la sélection des plantes.
4. faire correspondre les critères ci-dessus avec la liste des plantes disponibles/proposées.
5. Sélectionner la plante et mettre en œuvre la phytoremédiation.[19]

II.6.5.3 Avantages

Par rapport aux techniques conventionnelles physico-chimiques de traitement des matrices polluées (stabilisation, lavage, mise en décharge, confinement, incinération, etc.), la phytoremédiation présente de nombreux avantages d'ordre environnemental et économique. En effet, les techniques de phytoremédiation :

1. sont économiquement viables (cout faible), esthétiques et faciles à mettre en œuvre.
2. sont applicables à un grand nombre de polluants
3. ne provoquent qu'un minimum de perturbations dans l'environnement
4. elles apparaissent comme des méthodes alternatives ou complémentaires aux méthodes conventionnelles.

II.6.5.4 Limites

Malgré les avantages susmentionnés, la phytoremédiation présente certaines limites :

1. ne peut être applicable qu'aux sites faiblement contaminés.
2. Taux de croissance lent et faible biomasse des espèces.
3. La durée du traitement est contexte-dépendante : caractéristiques du sol, nature des polluants considérés, niveau de la pollution, espèces végétales utilisées.
4. Tolérance limitée des espèces végétales : Seule la fraction biodisponible de polluant peut être prélevée par les plantes.
5. Inhibition de l'accumulation d'un polluant par la plante lorsque le sol contient une pollution polymétallique.
6. la capacité des plantes à accumuler les métaux décroît lorsque la concentration des métaux dans leurs tissus augmente.
7. l'action de la plante est généralement limitée au sol de surface et dépend fortement de la biodisponibilité des polluants dans cette zone.[20]

Chapitre III :

Matériels et méthodes

III.1 Introduction

Ce travail a été réalisé au Laboratoire des déchets radioactifs du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA). Notre objectif est la détermination des radioéléments naturels (NORM), principalement le Ra-226, contenus dans les déchets de boues de forage d'un champ gazier du sud algérien ainsi que la mesure de leur radioactivité par spectrométrie gamma. Une synthèse de différents travaux réalisés par différents auteurs sur la phytoremédiation du Ra-226 est présentée.

III.2 Echantillonnage

Les échantillons faisant l'objet de notre étude ont été prélevés lors d'une campagne de mesure radiologique effectuée par le Centre de Recherche Nucléaire d'Alger sur les puits de forage d'une compagnie gazière sise à Adrar. La technique d'échantillonnage par jugement a été utilisée. Chaque échantillon final des deux est un mélange de cinq prélèvements pour s'assurer une bonne représentativité.



Figure 7 : Résidus de boue de forage

III.3 Les lieux de prélèvement d'échantillons

Bourbiers :

Bassins d'entreposage destinés pour recevoir les résidus de traitement de boues de forage. Ces résidus se présentent sous forme de sable huileux.

Sable noire (LGS) : Sable de couleur noire ou en anglais, LGS acronyme de Low Gravity Solids entreposés sous forme de tas ou parfois étalés sur le sol au niveau de la quasi-totalité des puits. Ils sont issus du traitement des boues huileuses de forage.



Figure 8 : Bourbiers de stockage de LGS

Bassins d'eau : Utilisés comme réservoir d'eau pour les besoins de l'opération de forage.



Figure 9 : Bassin d'eau pour le forage

Lieu de stockage des déchets huileux solidifiés

Ouvrage en béton contenant des déchets huileux solidifiés avec du ciment. Ces déchets sont générés par l'opération de traitement des boues de forages.



Figure 10 : Solidification des résidus de boue de forage

III.4 Préparation des échantillons

Matériels utilisés

- Tamiseuse de huit calibre : 100, 200, 300, 500, 600, 800, 900, 1400 μm (modèle Fisher Scientific) ;
- Etuve (modèle Memmert) ;
- Flacon 20 ml ;
- Spatule ;
- Balance (modèle KERN pes, $d=0,01\text{g}$) ;
- Chaîne de spectrométrie gamma avec un détecteur Ge HP (CANBERRA, AFTmodel 2025) ;
- Chaîne de spectrométrie de Fluorescence X de marque PGT (Princeton Gamma Technology).

III.4.1 Séchage

Pour les besoins d'expériences, les quantités prélevées sont soumises à un séchage dans l'étuve à 105°C suivi d'un tamisage.

III.4.2 Tamisage

Pour l'homogénéisation granulométrique, les échantillons ont subi un tamisage avec un calibre de $200\mu\text{m}$ de diamètre. Leur granulométrie est donc inférieure ou égale à $200\mu\text{m}$.



Figure 11 : Tamisage des échantillons

III.5 Préparation des échantillons pour analyse

Pour les besoins d'expériences, deux types de préparation des échantillons sont réalisés. La première préparation est destinée à l'analyse par spectrométrie à fluorescence X (FRX) et la deuxième destinée à l'analyse par spectrométrie gamma.

III.5.1 Préparation d'échantillons pour analyse par FRX

Après leur tamisage, 3.5 g de chaque échantillon, ont été mis dans des capsules à pastilles adaptés à l'analyseur FRX (figure13). Ces capsules sont alors analysées.



Figure 12 : Echantillons pour analyse FRX

III.5.2 Préparation d'échantillons pour analyse par spectrométrie gamma

Des flacons en polyéthylène de 20 mL chacun ont été remplis par les échantillons respectifs, hermétiquement scellés par la silicone (figure 14) et pesés (tableau 2). Avant leur analyse par spectrométrie gamma, ces flacons sont laissés pour équilibre séculaire pendant environ 3 semaines au bout desquelles les échantillons sont analysés.



Figure 13 : Conditionnement des échantillons pour spectrométrie gamma

Tableau 2 : Nature et masse des échantillons

Echantillon	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12
Nature	Bourbiers					LGS				Bourbiers		
Masse (g)	20.8	20.6	19.5	16.6	20.1	20.7	24.6	20.1	19.2	19.3	19.6	18.9

III.5.3 Procédures d'analyse

Après leur conditionnement, les résidus NORM sont soumis à une analyse minéralogique et une analyse radiologique par spectrométrie gamma.

III.5.3.1 Les conditions opératoires

L'analyse d'un spectre peut se diviser en sept étapes principales :

1. Les opérations précédant l'analyse du spectre : l'étalonnage en énergie et en efficacité de la chaîne de mesure ;
2. L'acquisition d'un spectre de bruit de fond ;
3. L'acquisition du spectre de l'échantillon à analyser ;
4. La soustraction du bruit de fond ;
5. La recherche des pics ;
6. L'analyse des pics ;
7. L'identification des radionucléides et le calcul d'activité.

Chapitre IV :

Résultats et discussions

Dans ce qui suit, les différents échantillons NORM sont numérotés de 1 à 12 le sol prélevé en dehors de la zone de rejet des déchets est noté Blanc.

IV.1 Résultats de l'analyse minéralogique (FRX)

Les résultats d'analyse élémentaire des différents échantillons sont regroupés dans le tableau 3.

Tableau 3 : Concentrations des éléments chimiques dans les échantillons et le blanc

Élément chimique	Blanc	Concentration (ppm)					
		1	2	3	4	5	6
Na	***	1408,35	38,28	119,78	777,52	1240,90	2083,21
Mg	11483	9534,22	577,44	0,00	2211,74	5155,19	10009,30
Si	478000	183714,59	143833,03	132588,12	156065,55	162003,27	219481,50
P	772	850,22	***	***	1261,38	259,35	830,31
K	10291	15207,59	11765,40	12955,39	7135,54	13164,91	10254,89
Ca	18780	13067,97	28531,04	17996,73	42729,83	24729,88	33407,67
Sc	3.04	0,44	1,13	0,87	1,58	0,48	1,20
Ti	1475	4952,53	8123,45	9066,69	3612,08	7712,13	3063,53
V	106	55,46	202,70	201,65	47,14	123,53	91,32
Cr	83.9	126,49	49,85	50,94	66,79	56,26	53,59
Mn	120	817,72	457,95	423,99	741,19	368,30	185,92
Fe	8188	59582,90	36928,72	54943,60	55120,65	38085,78	17359,83
Co	3.9	13,19	6,57	10,19	15,49	8,99	6,89
Ni	45.7	87,65	90,73	99,10	97,99	93,20	109,06
Cu	20.1	6,50	5,92	5,73	8,61	5,77	6,34
Zn	56.4	45,00	43,09	54,86	272,58	53,82	23,53
Br	2.4	5,99	7,19	7,46	10,14	7,03	1,68
Rb	20.9	58,88	80,83	79,91	53,53	91,68	45,68
Sr	124	211,34	286,07	327,25	230,38	257,99	127,85
Y	***	53,93	29,57	60,92	47,67	24,19	5,90
Zr	639	221,48	320,17	224,86	407,34	336,89	647,11
Nb	8.5	19,36	13,95	36,38	107,81	10,00	16,93
Ba	***	451,11	2920,66	2135,72	792,42	1204,08	449,70
Pb	2.6	41,74	71,22	66,02	452,39	59,65	15,59
Th	0.3	6,43	7,66	5,20	6,69	11,33	2,72
U	0.8	2,29	3,54	1,94	16,03	3,40	1,23

Tableau 3(suite) : Concentrations des éléments chimiques dans les échantillonset le blanc

Elément chimique	Concentration (ppm)					
	7	8	9	10	11	12
Na	1470,41	729,13	819,69	765,74	1980,14	1087,52
Mg	5094,03	2043,77	3356,60	1100,10	10752,81	4502,77
Si	212243,16	122754,04	166867,52	155803,89	186802,09	177776,50
P	258,35	NF	376,99	31,95	946,01	137,65
K	8458,60	11652,84	11728,60	11252,28	11543,48	9505,55
Ca	36944,91	13427,74	12011,83	23118,07	58016,93	20851,15
Sc	1,48	0,51	0,40	0,52	2,58	0,56
Ti	2805,25	11046,83	11122,85	10773,83	4003,18	8150,98
V	98,26	330,94	245,03	285,13	85,79	241,30
Cr	56,46	50,90	48,08	32,38	60,10	42,09
Mn	264,85	325,57	508,67	408,88	367,10	359,73
Fe	18375,31	45645,92	38222,67	39009,52	40041,90	38834,71
Co	4,00	10,85	7,35	6,33	8,60	6,97
Ni	110,78	93,40	94,40	92,83	87,08	92,72
Cu	6,86	6,06	5,36	5,32	7,37	5,50
Zn	39,62	72,10	46,66	44,35	80,83	44,78
Br	1,78	7,01	6,62	7,01	8,68	7,33
Rb	36,76	71,64	74,68	82,09	74,33	83,06
Sr	111,45	559,72	341,79	454,89	181,64	387,45
Y	4,56	45,82	33,12	30,27	28,99	26,26
Zr	269,30	178,53	396,64	359,82	163,95	270,22
Nb	9,79	26,97	18,73	14,01	8,65	9,84
Ba	595,88	5017,60	3625,87	5274,91	594,76	4058,65
Pb	21,02	64,08	52,51	62,45	75,89	64,93
Th	2,52	5,23	6,58	5,07	8,09	6,76
U	1,03	2,80	3,42	3,37	3,40	3,71

A partir du tableau 3, nous constatons que les échantillons sont riches en minéraux tels que : K, Ca, Mg, Na et P. D'autre part, ils contiennent des éléments traces métalliques (ETM) : Cr, Co, Cu, Ni, Zn, Pb qui, à partir d'un certain seuil, sont connus pour leur toxicité respective. Les valeurs de ces métaux sont relativement élevées. Pour le Pb par exemple, les teneurs varient de 15.59 ppm (éch. 6) à 75.89 ppm (éch. 11) avec une valeur maximale de 452.39ppm (éch. 4). Celles-ci, sont non seulement supérieures à celle du blanc (20.9ppm) mais elles dépassent les teneurs moyennes de la croûte terrestre continentale de 16 ppm [21].

L'U et le Th en tant que radioéléments naturels de la croûte terrestre se retrouve à des niveaux de concentrations normales existantes dans les sols.

Le bruit de fond du baryum (Ba) dans les sols varie de 100 à 3000 ppm, avec une moyenne de 500 ppm[22]. Le tableau 3 montre deux gammes de valeurs. La première est la gamme des teneurs inférieures à 3000 ppm allant 451,11 (éch. 1) à ppm à 2920,66ppm (éch. 2). La deuxième gamme est celles supérieures à 3000ppm (3625,87 ppm (éch. 9)- 5274,91ppm (éch.10)). Du point de vue sanitaire, ces concentrations pourraient être toxiques.

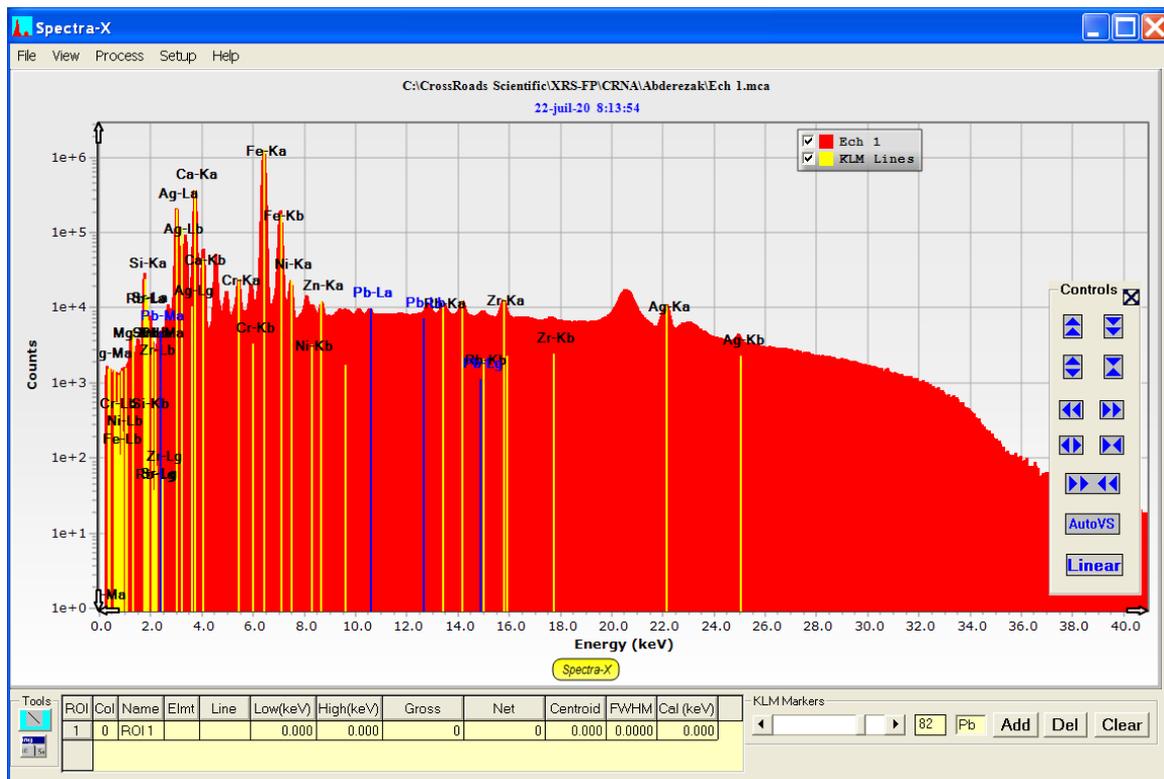


Figure 14 : Spectre caractéristique de l'échantillon 10

IV.2 Résultats des analyses par spectrométrie gamma

Après passage de chaque échantillon à la spectrométrie gamma pour analyse, un spectre donnant le nombre de coups en fonction de l'énergie des radioéléments est obtenu sur l'écran du traitement du signal (figure 15).

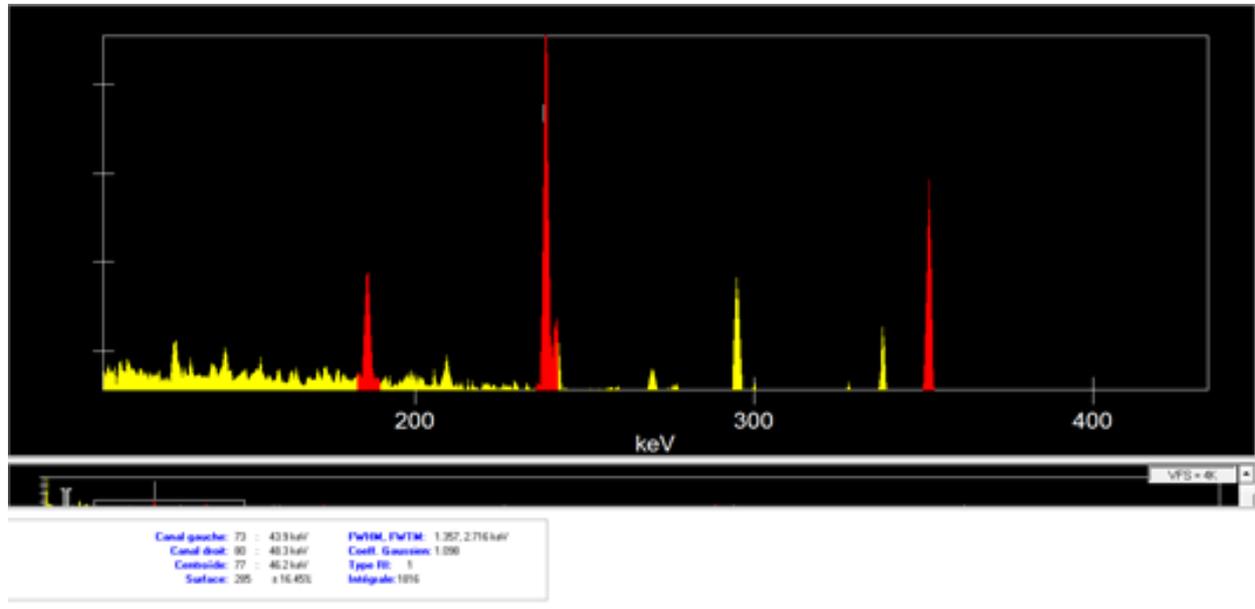


Figure 15 : Spectre illustrant les pics des radioéléments

Sur chaque spectre, les éléments radioactifs naturels de l'échantillon analysé sont identifiés. Le tableau (06) montre les principaux radioéléments avec leurs énergies respectives. Sur ce tableau, nous constatons la présence des principaux NORM à savoir, le potassium (K-40), les descendants des chaînes naturelles de l'uranium 238, à savoir : le Ra-226, le Pb-210, le Pb-214 et le Bi-214 et celle de thorium 232 : le Pb-212 et l'Ac-228.

Tableau 4 : Principaux radioéléments naturels (NORM) identifiés

Radionucléide	Energie (KeV)
Pb-210	46.539
Ra-226	186.21
Pb-212	238.632
Pb-214	351.925
Bi-214	609.318
Ac-228	911.16
K-40	1460.83

Pour chaque radioélément du spectre, la surface nette de la raie correspondante a été mesurée (après déduction du bruit de fond) dans le but de calculer l'activité spécifique de cet élément par la formule (7). Les résultats de ces activités sont donnés dans le tableau (5).

A noter qu'avant le calcul de cette activité, les efficacités de détection respectives des radioéléments ont été déterminées en utilisant l'équation apparaissant sur la figure (25) de la courbe d'efficacité.

Parmi ces radionucléides, seuls, le Ra-226, qui est reconnu l'élément prédominant dans déchets NORM de l'industrie pétrolière et gazière [25], le Pb-210 et le K-40 sont pris en compte dans cette étude, et ce, pour leur impact radiologique sur l'homme et l'environnement.

- Sur le tableau donnant l'activité des radioéléments, les valeurs du Ra-226, varient de (61.41 ± 3.07) et $(252.37 \pm 12.62 \text{ Bq.Kg}^{-1})$ avec une valeur maximal de $30785.01 \pm 1539.25 \text{ Bq.Kg}^{-1}$. Ceci est bien illustré sur les figures 16 et figure 17(pour la valeur maximale).

Toutes ces valeurs sont supérieures à celle trouvée dans l'échantillon blanc. Elles sont assez élevées par rapport à celle données dans la littérature comme valeur moyenne mondial dans l'environnement (sol) par l'USCEAR, elle est de 33 Bq.Kg^{-1} [26].

Les résultats mettent en évidence la présence importante du Ra-226 dans les résidus des boues de forage de l'industrie gazière étudiés.

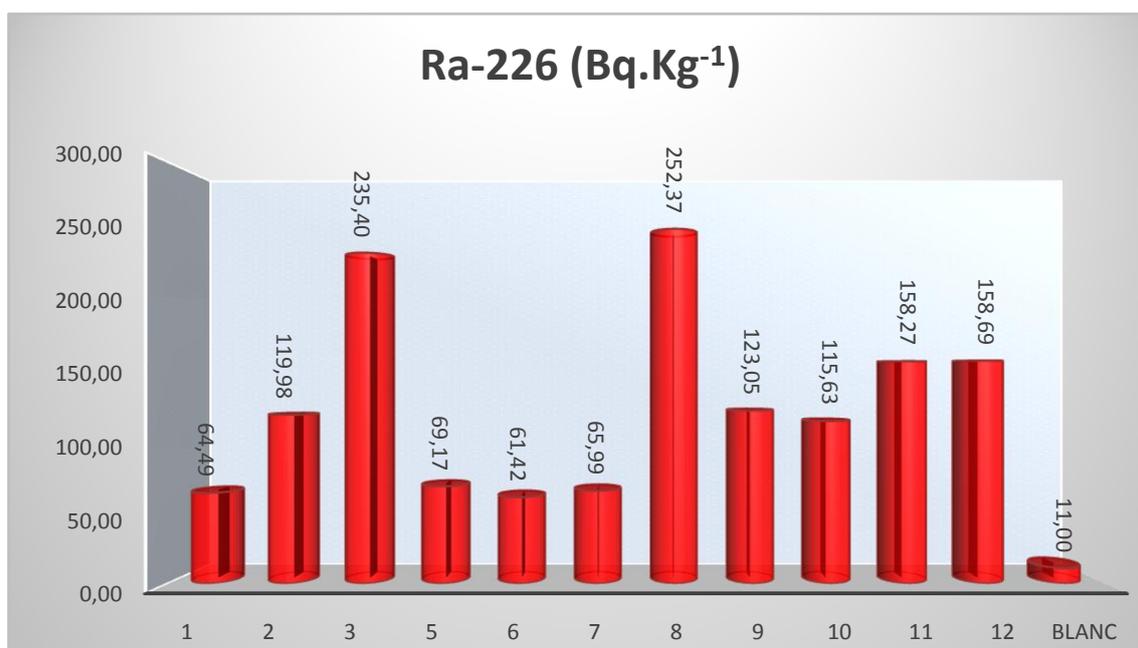


Figure 16 : Concentration du radium 226 dans les échantillons

Cependant, en vue des différents résultats obtenus dans la littérature, le Ra-226, ceux obtenus dans les résidus des boues de forage sont inférieurs à ceux trouvés dans les dépôts des

différents équipements et installations de surface au cours de production du pétrole et du gaz. En effet, dans ces derniers les valeurs ont atteint dans certains endroits 15000 Bq.g^{-1} ($15 \cdot 10^6 \text{ Bq.Kg}^{-1}$). En Algérie, par exemple, les travaux de M. S. HAMLET (2002) ont montré une gamme de valeurs allant de 1 à 950 Bq.Kg^{-1} .

Les raisons de cette différencerésident dans le fait qu'au cours du procédé d'extraction du pétrole ou du gaz, il ya incompatibilité des eaux de gisement avec les eaux d'injection à des différentes températures et des pressions. En effet, les eaux produites et celles injectées dans les puits sont respectivement riches en ions alcalino-terreux (ex. baryum) et sulfate [24], ce qui a pour conséquence, la formation du sulfate de baryum qui coprécipite le radium en son sein. Ce qui engendre des concentrations élevées du Ra-226 et la plupart des résidus générés sont gérés comme déchets radioactifs.

Dans le cas de notre travail, seul l'échantillon n° 4 peut être considéré comme déchet radioactif vue son activité ($30785,01 \pm 1539,25 \text{ Bq.Kg}^{-1}$) qui dépasse de trois (03) fois la limite d'exemption du Ra-226 est qui est de 10^3 Bq.Kg^{-1} (10 Bq.g^{-1}) [25]. Néanmoins, les valeurs trouvées, comme elles dépassent les valeurs moyennes de l'environnement, peuvent être considérées comme valeurs polluantes.

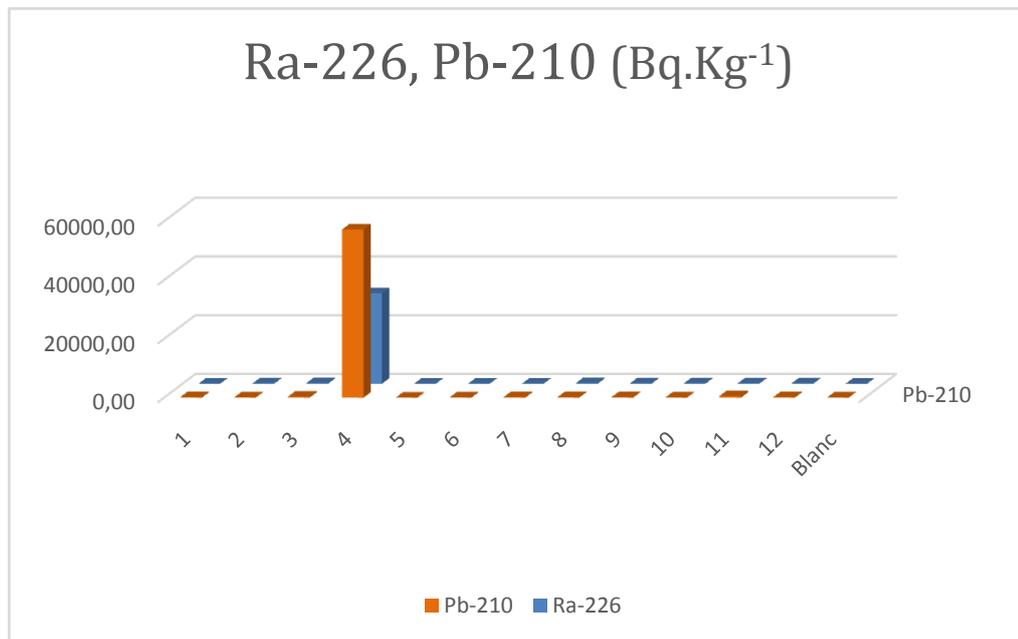


Figure 17 : Concentrations de Ra-226 et Pb-210

-Les valeurs du Pb-210 varient de $44,29 \pm 2,21 \text{ Bq.Kg}^{-1}$ (éch. 5) à $529,48 \pm 26,47 \text{ Bq.Kg}^{-1}$ (éch.11) avec une valeur maximale de l'échantillon n° 4 qui est de $57199,63 \pm 2859,98 \text{ Bq.Kg}^{-1}$. Cette valeur renforce l'idée que l'échantillon 4 doit être considéré comme déchet

radioactif et géré comme tel puisque son activité est plus de cinq (05) fois la limite d'exemption du Pb-210 qui est aussi de 10 Bq.g⁻¹.

De même que pour le Ra-226, des concentrations élevées ont été trouvées au cours des procédés d'extraction pétrolière et gazière. En Algérie, des activités de Pb-210 allant de (50 à 10⁵) Bq.Kg¹ ont été mises en évidence dans les différents dépôts [25].

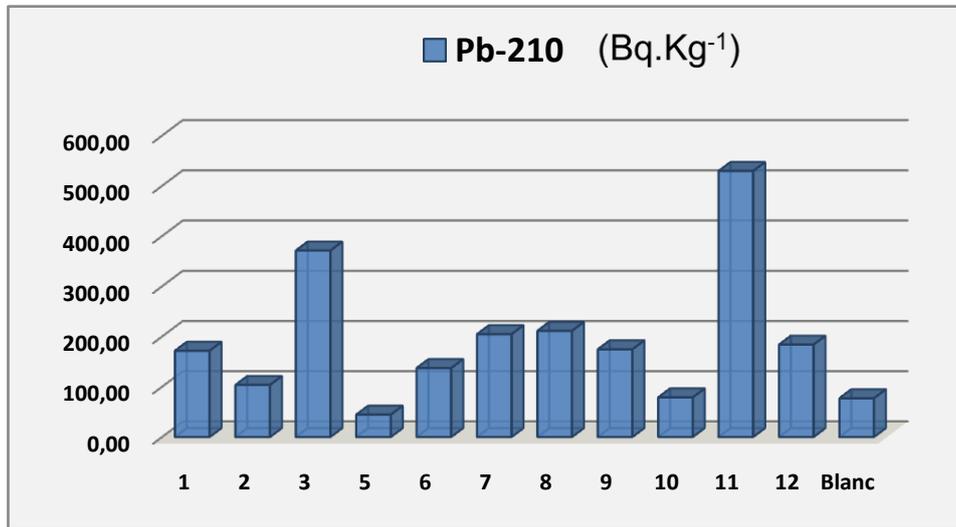


Figure 18 : Concentration du Pb-210 dans les échantillons

-L'UNCEAR a fourni la valeur de 420 Bq.Kg⁻¹ de potassium-40 (K-40) comme moyenne mondiale dans le sol. Comme l'activité du K-40 varie d'un sol à un autre et d'un horizon à un autre, par exemple, dans le sol belge des données ont fourni des valeurs allant de 70-900 Bq.Kg¹ résultats trouvés dans cette étude peuvent être considérés comme des valeurs d'un naturel.

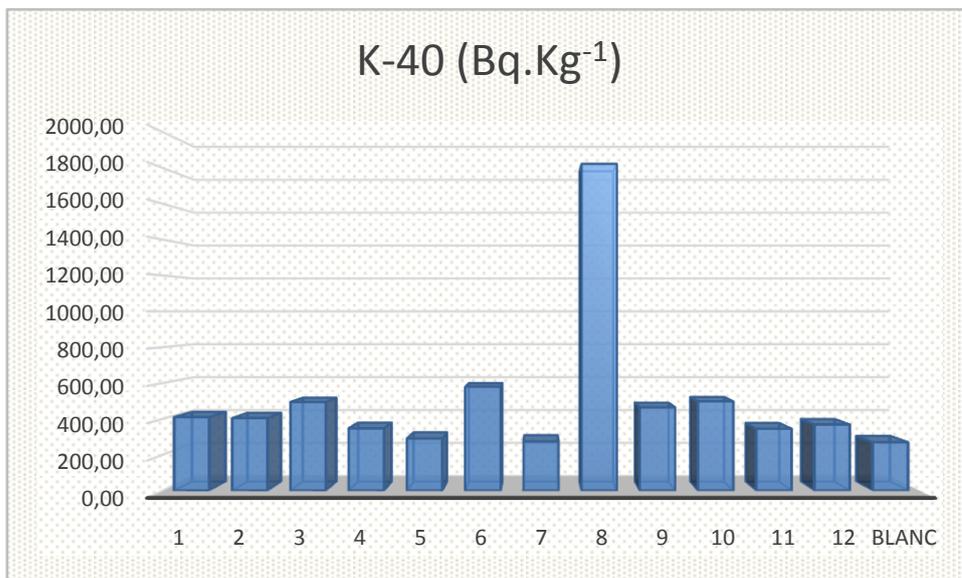


Figure 19 : Concentration du K-40 dans les échantillons

Conclusion

Conclusion

La protection radiologique de la santé humaine et de l'environnement est le principal objectif de la gestion des déchets radioactifs.

Cette gestion passe par plusieurs étapes. Parmi celles-ci, la décontamination des matériaux, des équipements, des produits et des sols.

L'exploitation pétrolière et gazière, a le potentiel d'augmenter le risque d'exposition aux rayonnements, de l'homme et de l'environnement, en concentrant les quantités de radioactivité au-delà des niveaux du bruit de fond naturel. Cette concentration est due aux NORM, principalement au Ra-226, présents dans les résidus.

Dans cette étude, nous nous sommes intéressés à la caractérisation des résidus contenant des NORM, des boues de forage de l'industrie pétrolière et gazière du sud algérien.

Les résultats d'analyse minéralogique par la FRX, a montré que les résidus contiennent des polluants autres que radioactifs, à savoir, des Eléments Traces Métalliques polluants (ETM) principalement du plomb (Pb).

Les résultats d'analyse radiologique, par la technique de spectrométrie gamma, a mis en évidence la présence des principaux radioéléments naturels : le Ra-226, le Pb-210 et le K-40.

A partir des résultats des activités spécifiques obtenues de ces radioéléments, il apparait que les résidus peuvent être considérés comme des déchets à traiter avant leur rejet dans l'environnement, à l'exception de l'échantillon n°4 dont l'activité dépasse de plus de trois fois la limite d'exemption (10 Bq.g^{-1}) pour le Ra-226 ($30,8 \text{ Bq.g}^{-1}$) et de plus de 5 fois pour celle du Pb-210 ($57,2 \text{ Bq.g}^{-1}$). Cet échantillon devrait être considéré comme un déchet radioactif et donc, géré comme tel. Le K-40, quant à lui, est de l'ordre du bruit de fond naturel dans les sols.

Au vue de ces données, les résidus devraient subir des traitements adéquats que ce soit pour leur pollution aux ETM ou pour leur contamination aux NORM.

Référence bibliographique

Référence bibliographique

- [1]- **LOWENTHAL G.C., AIREY P.L.**– Practical applications of radioactivity and nuclear radiation –cup 2001.
- [2]- **AGOUAR, Kamel. AIT ABDELMALEK, Tahar.** Evaluation de la Radioactivité Naturelle et Artificielle dans le sédiment superficiel de la Baie D’Alger. Ingénieur d’état. Aménagement du littoral. Alger, 1994, 94p.
- [3]-**IAEA (2003).** “Radiation protection and the management of radioactive waste in the oil and gas industry”. International Atomic Energy Agency, Vienna, safety reports series no. 34.
- [4]-**COMMISSARIAT A L’ENERGIE ATOMIQUE ET AUX ENERGIES ALTERNATIVES,** France livret-radioactivité version-2018.
- [5]- **FACULTES UNIVERSITAIRES NOTRE-DAME DE LA PAIX,**Service de radioprotection, manuel de radioprotection, version 0.9, 2005.
- [6]-**CENTRE NATIONAL DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE, FRANCE,**Guide de radioprotection 1ère édition septembre 2007.
- [7]-**F.N. Flakus* AIEA BULLETIN, VOL.23, no 4**Détection des rayonnements.
- [8]-**IAEA SAFETY STANDARDS**Classification of Radioactive Waste General Safety Guide No. GSG-1 2006.
- [9]- **INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY.**The Environmental Behaviour of Radium. VIENNA: AIEA, 1990. 87P: ill. Technical Report Series N° 310. ISBN 92-0- 125590-2.
- [10]-**MANAGEMENT OF RADIOACTIVE WASTE IN AUSTRALIA**January 2011.[11]-**INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY.** Technique and Practices for Pretreatment of low and intermediate level solid and liquid Radioactive Wastes. VIENNA: AIEA, 1984. 87p: ill. Technical Report Series N° 272. ISBN 92-0-125087-8.
- [12]- **INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY.** Treatment of Low and Intermediate –Level liquid radioactive Wastes. VIENNA: AIEA, 1984. 87p: ill. Technical Report Series N° 236. ISBN 92-0-125087-8.
- [13]- **INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY.** « Gestion des déchets radioactifs avant stockage définitif », N° GSR Part 5, normes de sûreté de l’AIEA.2009.
- [14]-**INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY.** Exploitation & production (E&P) Waste management guidelines report N 2.85/196- 1993.
- [15]- **INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY.** Radiation protection and the management of radioactive waste in the oil and gas industry training course series no. 40 - Vienna, 2010.

Référence bibliographique

- [16]- **REHMAN HAKEEM.K ET AL**, Soil remediation and plants prospects and challenges, Elsevier,(2015).
- [17]- **ENVIRONMENTAL REMEDIATION TECHNOLOGIES**for metal-contaminated soilsjapan 2016.
- [18]-**DUSHENKOV V., ET AL.** (1995). Rhizofiltration : the use of plants to remove heavy metal from aqueous streams. Environ. Sci. Technol., 1239-1245.]
- [19]- **INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY**,Technical reports series no. 424 remediation of sites with dispersed radioactive contamination,vienna, 2004.
- [20]- **JAYPEE INSTITUTE OF INFORMATION TECHNOLOGY**,Phytoremediation of radioactive metals raves hamalhotra, sahilagarwal, *pammigauba, august, 2014.
- [21]- **DENIS BAIZE**, Archeo Sciences Revue d'archéométrie, n°34. Teneurs totales en plomb en fonction de la profondeur dans les sols « naturels ». 2010
- [22]- **BROOKS RR (1978)**pollution through trace elements. In :bockrisjom, ed. environmental chemistry. newyork, ny, plenum press, pp. 429–476.
- [23]- **INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY**. Report of analysis on Determination of thorium and uranium naturally occurring radioisotopes in IAEA 2001reference materials. IAEA laboratories (Chemistry Unit-01-10), SeibersdorfAustria, p.1-5.
- [24]-**HAMLAT**,Precipitate containing norm in the oil industry: modelling and laboratory experiments(2003).
- [25]-**HAMLAT M.S.**, Interactions géochimiques des NORM dans l'industrie pétrolière et gazière. Thèse de doctorat d'état. Université Mouloud Mammeri (Tizi-Ouzou), 2004.
- [26]- **RAPPORTUNSCEAR2000 Vol. I "sources and effects of ionizing radiation" 2000.**
- [27]- **INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY**. Measurement of radio-nuclides in food and the environment,Technical Report Series No. 295,1989.
- [28]- **ERIC LASCAR**. Comportement du radium et ses ascendants radioactifs dans les sols et transfert dans lesvégétaux terrestres. Géochimie. Université de Strasbourg,2019.
- [29]- **ARTICLE INRADIOCHIMICA**ACTAUptake of uranium, thorium and radium isotopes by plants growing in dam impoundment Tasotkel and the Lower Shu region (Kazakhstan) · January 2015.
- [30] **DRA. MARTA.H.DE PRAHISSA**. « Gestion de residuosradioactivos ». Gerencia deseguridad radiologica y nuclear; Facultad de ingenieria (U.B.A) Curso de pos-grado enprotection radiologica y seguridad nuclear. Buenos Aires. Argentina.1991. 90p.

Annexes

Annexes

Annexe 1 : Analyse minéralogique par la fluorescence à Rayons X (FRX)

La Fluorescence à Rayons X (FRX) est une technique analytique largement utilisée pour l'analyse élémentaire ou chimique rapide et non destructive dans les domaines de la science des matériaux, de la science des polymères, des sciences de l'environnement, de la géochimie, de l'électronique, de la médecine légale, de l'archéologie et récemment pour des applications biologiques et médicales. Les progrès récents de la technologie des rayons X ont conduit au développement de l'analyse FRX capable d'une résolution spatiale élevée, fournissant ainsi une caractérisation à haute sensibilité dans un format d'image pour chaque élément.

La fluorescence à rayons X (FRX) est généralement associée à l'émission de rayons X «secondaires» (fluorescents) caractéristiques d'un matériau excité à l'aide de rayons X ou gamma à haute énergie.

Le spectromètre de fluorescence X utilisé est de type *Panalytical PW 2440 MagiX Pro*, sous les conditions suivantes : anode en rhodium ; puissance du tube : 2.5 kW ; détecteurs : flux gazeux à scintillation.

La spectroscopie de fluorescence X est une méthode non destructive, rapide, sélective et précise permettant la détermination qualitative et quantitative des éléments présents dans l'échantillon à examiner.

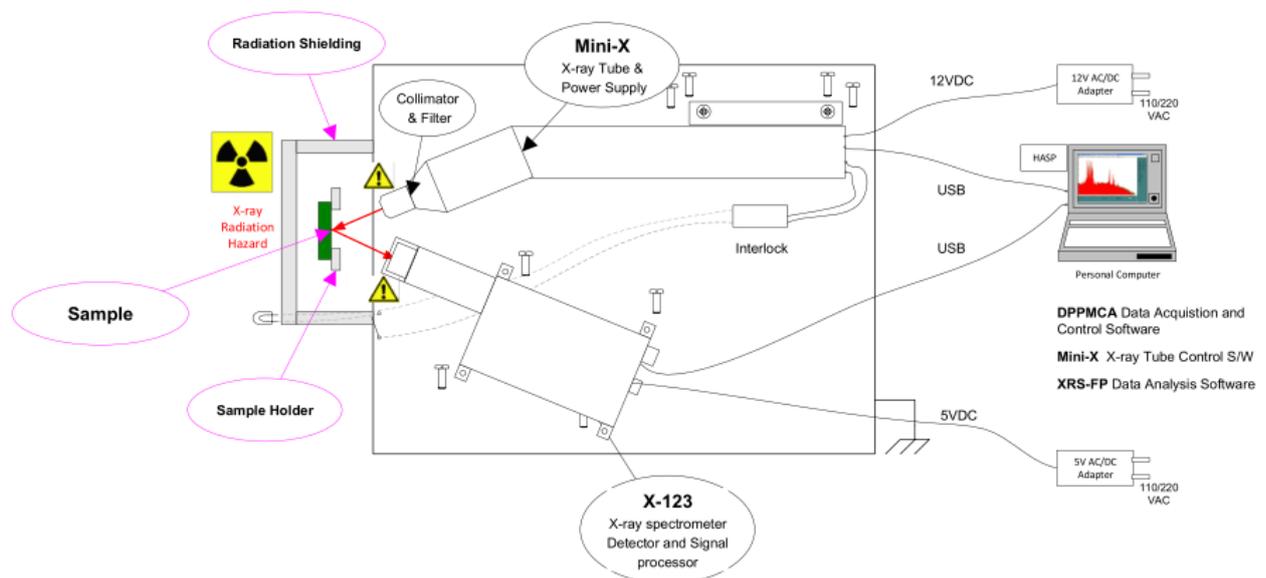


Figure 20 : Schéma descriptive de la chaine FRX

Annexes

Principe de la FRX

Le principe de cette méthode est basé sur la loi fondamentale de Bragg. Un faisceau de rayons X primaire irradie l'échantillon à analyser. Ce dernier émet des rayons X secondaires de fluorescence dont les longueurs d'ondes sont caractéristiques des éléments constituant l'échantillon (Figure 20).

L'identification des éléments présents dans l'échantillon est donnée par l'analyse qualitative (identification des pics). Par contre, la teneur des éléments est effectuée par l'analyse quantitative (mesure de l'aire du pic).

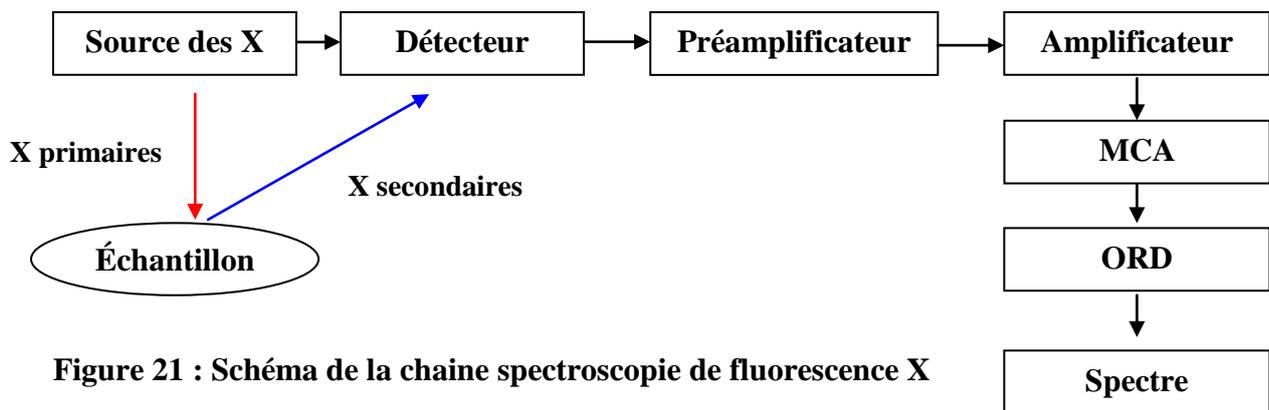


Figure 21 : Schéma de la chaîne spectroscopie de fluorescence X

Étalonnage de la FRX

Le système FRX doit être étalonné avant de pouvoir être utilisé pour une analyse quantitative de routine. Il y a deux parties principales à cet étalonnage.

1. Le premier est l'étalonnage du spectromètre, qui garantit que les pics de rayons X se trouvent aux bons endroits par rapport à une échelle d'énergie connue.
2. Le second est l'étalonnage des sensibilités élémentaires individuelles, également connu sous le nom de coefficients d'étalonnage.

Calcul de la concentration

L'analyse chimique des échantillons par FRX donne des intensités des éléments chimiques existant dans la matrice. Pour déterminer les concentrations de ces éléments on utilise la

formule suivante :

$$C_x = C_s \frac{I_x}{I_s} \quad (5)$$

C_x : concentration de l'élément chimique

C_s : concentration du standard

I_x : Intensité de l'élément chimique

I_s : Intensité du standard

Annexes

Annexe 2 : Analyse radiologique par la spectrométrie gamma

L'Analyse par spectrométrie gamma est une méthode non destructrice, elle permet de déterminer qualitativement et quantitativement l'activité des éléments de l'échantillon à analyser.

La chaîne de spectrométrie gamma utilisée dans cette étude est une chaîne à Germanium Hyper Pur Ge(HP) (figure 17), selon le mode d'acquisition de mesure des rayonnements gamma. Elle est composée (figure 16) de :

- Détecteur Ge(HP), avec son électronique associée ;
- PC pour traitement des données ;
- Azote liquide à -196°C .



Figure 22 : Chaîne de spectrométrie gamma

Principe de la spectrométrie Gamma

Lorsqu'un rayon gamma passe à travers le détecteur, il y a ionisation et création de paires électron-positron. Les charges sont collectées par la tension appliquée au détecteur. Le préamplificateur et l'amplificateur assurent la mise en forme et l'amplification des impulsions produites par l'interaction des photons. L'ADC mémorise les impulsions digitalisées dans différents canaux en fonction de leurs amplitudes. La lecture du nombre d'impulsions enregistrées par logiciel de contrôle, qui permet de visualiser le spectre en temps réel (Figure 17).

Annexes

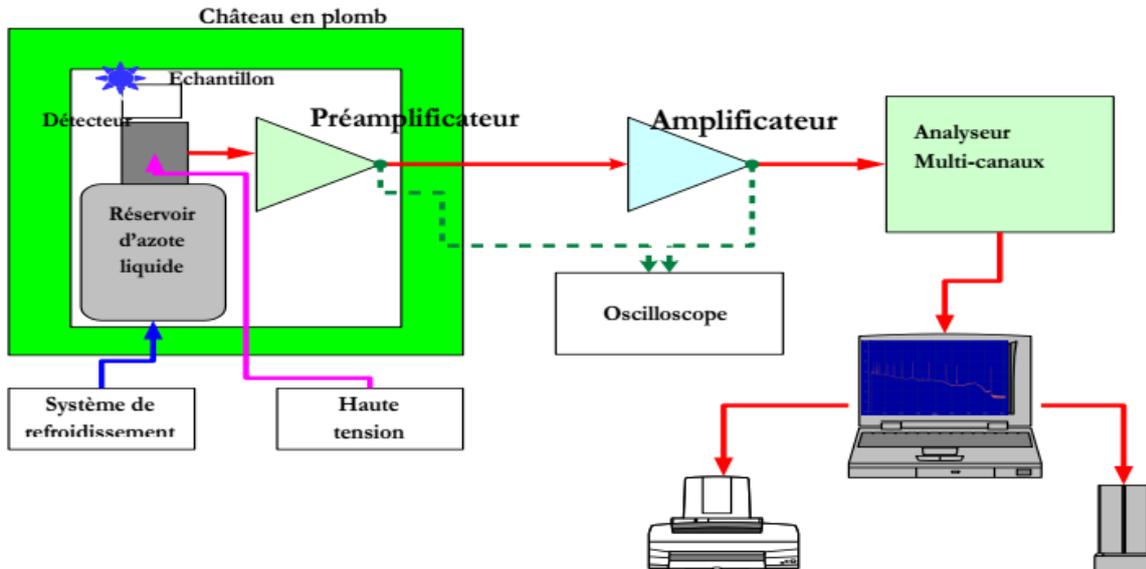


Figure 23 : Schéma de principe d'une chaîne de spectrométrie gamma

Calibration de la chaîne de mesure

Toute mesure de radioactivité doit être précédée d'une calibration de la chaîne de mesure. Cette calibration doit se faire en énergie et en efficacité.

a- Calibration en énergie :

Afin de pouvoir identifier les différents radioéléments présents dans un échantillon, il est nécessaire d'identifier avec exactitude les pics présents dans le spectre. Les impulsions enregistrées par le détecteur, à la suite d'une émission de rayonnement gamma, sont classées selon l'énergie par l'analyseur multicanaux dont chaque canal représente une fenêtre d'énergie (figure 24).

Une calibration en énergie traduit, donc, la correspondance qui existe entre les canaux et leur énergie. Elle est effectuée à l'aide d'une source standard présentant une large gamme d'énergie (50 à 2000 KeV).

Pour cela, trois sources étalons couvrant cette gamme d'énergie sont utilisées :

- Source de Cobalt-60 (^{60}Co) : activité de 2.03 μCi à la date de 03/02/1986 ;
- Source d'Américium-241 (^{241}Am) : activité de 0.92 μCi à la date de 03/02/1986 ;
- Source de Césium-137 (^{137}Cs) : activité de 1.09 μCi à la date de 03/02/1986 ;

Procédure de calibration en énergie

- Introduire les trois sources étalons dans le détecteur, en fixant un temps de comptage et démarrer l'acquisition ;

Annexes

- après l'arrêt de l'acquisition, marquer les pics visualisés et les faire correspondre à ceux donnés par le logiciel intégré *Genie2000*. Celui-ci fournit la droite de calibration en énergie.

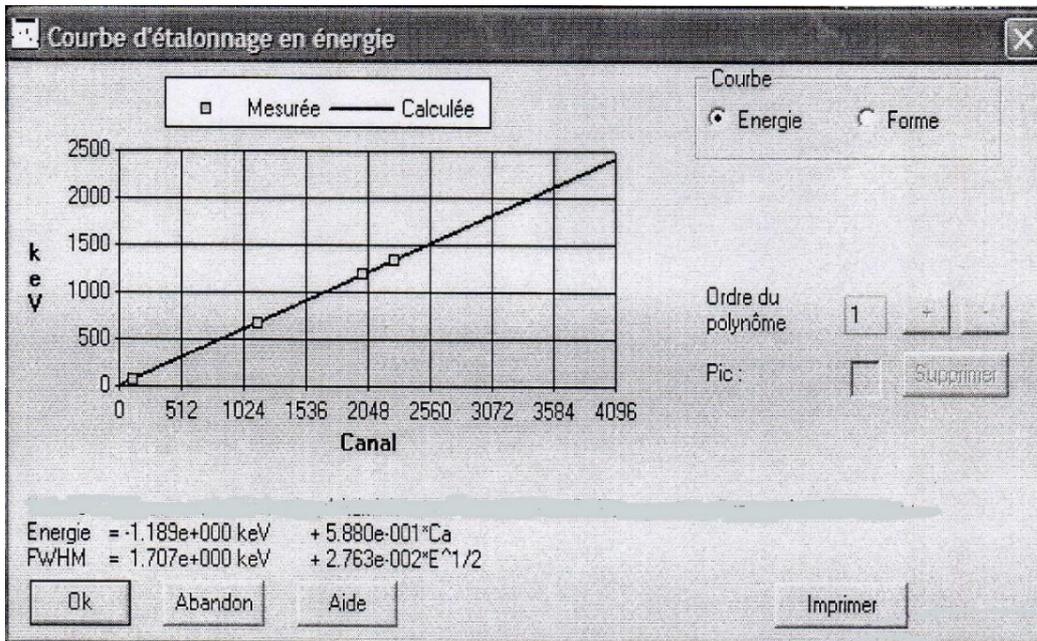


Figure 24 : Droite de calibration en énergie

b- Calibration en efficacité

La détermination de l'activité contenue dans un échantillon nécessite la connaissance de l'efficacité de détection qui dépend de la nature de la source, de la géométrie de comptage et de l'énergie du rayonnement.

Pour déterminer l'efficacité de détection, on doit disposer d'une source standard ayant les mêmes caractéristiques que l'échantillon à mesurer (densité, volume), en se plaçant dans les mêmes conditions de mesure (figure 25).

Procédure de calibration en efficacité

Dans le cas de notre étude, la détermination de la courbe d'efficacité de détection comprend les étapes suivantes :

- Préparation d'un échantillon standard dans lequel est injectée une solution radioactive d'euporium-152 (¹⁵²Eu), d'activité connue (105 Bq/mL à la date du 15/11/1995) ;

Introduction de l'échantillon dans le détecteur et lancement de l'acquisition pendant un temps de comptage déterminé ;

- Détermination de la courbe d'efficacité de détection aux énergies spécifiques de l'¹⁵²Eu, et ce, à partir du spectre mesuré et des données de référence de l'échantillon standard utilisé.

Le calcul de l'efficacité aux différentes énergies d'intérêt est effectué à partir de :

Annexes

$$\varepsilon = \frac{N}{A.t.I} \quad (6)$$

Où :

t (s) : temps de comptage ;

A (Bq/L ou kg) : activité de l'échantillon standard corrigée à la date de comptage ;

I (%) : probabilité d'émission de l'énergie E (tabulée) ;

N (coups) : surface nette du pic correspondant à l'énergie E (déduction faite du bruit de fond)

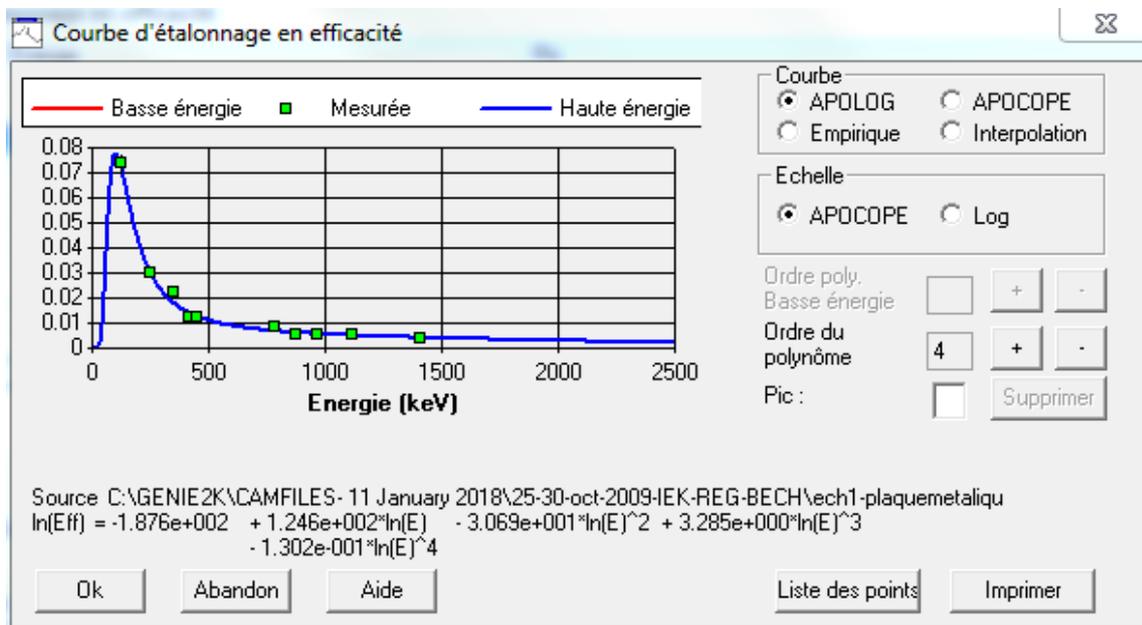


Figure 25 : Courbe d'étalonnage en efficacité

Calcul de l'activité

L'activité par la spectrométrie gamma est calculée par la formule suivante[27] :

$$A = \frac{N_{\text{net}}}{\varepsilon \cdot I \cdot t \cdot m} \quad (7)$$

N_{net} : Surface nette du spectre (coups).

ε : Efficacité de détection (%)

I : Taux d'émission du radioélément (%).

t : Temps de comptage ou d'acquisition (s)

m : Masse de l'échantillon à analyser

Annexes

Tableau 5 : Activités spécifiques des radionucléides NORM

Activité (Bq/Kg)							
Ech.	Pb-210	Ra-226	Pb-212	Pb-214	Bi-214	Ac-228	K-40
1	171,63 ± 8,58	64,48 ± 3,22	21,23 ± 1,06	35,19 ± 1,76	23,34 ± 1,17	20,82 ± 1,04	410,24 ± 20,51
2	103,47 ± 5,17	119,98 ± 6	37,12 ± 1,86	46,88 ± 2,34	38,48 ± 1,92	44,67 ± 2,23	404,87 ± 20,24
3	371,12 ± 18,56	235,40 ± 11,77	25,88 ± 1,29	127,57 ± 6,38	123,80 ± 6,19	59,64 ± 2,98	493,54 ± 24,68
4	57199,63 ± 2859,98	30785,01 ± 1539,25	156,09 ± 7,8	16721,67 ± 836,08	14426,30 ± 721,32	78,01 ± 3,9	347,40 ± 17,37
5	44,29 ± 2,21	69,16 ± 3,46	9,68 ± 0,48	26,69 ± 1,33	19,34 ± 0,97	15,83 ± 0,79	290,93 ± 14,55
6	137,13 ± 6,86	61,41 ± 3,07	33,51 ± 1,68	50,16 ± 2,51	43,88 ± 2,19	65,31 ± 3,27	579,03 ± 28,95
7	204,54 ± 10,23	65,98 ± 3,3	5,41 ± 0,27	27,32 ± 1,37	30,18 ± 1,51	17,57 ± 0,88	273,80 ± 13,69
8	211,26 ± 10,56	252,37 ± 12,62	55,46 ± 2,77	123,06 ± 6,15	134,19 ± 6,71	191,44 ± 9,57	1821,68 ± 91,08
9	174,45 ± 8,72	123,04 ± 6,15	27,12 ± 1,36	59,30 ± 2,97	54,96 ± 2,75	62,40 ± 3,12	464,54 ± 23,23
10	78,76 ± 3,94	115,62 ± 5,78	28,70 ± 1,44	48,21 ± 2,41	41,50 ± 2,08	50,27 ± 2,51	497,75 ± 24,89
11	529,48 ± 26,47	158,27 ± 7,91	14,09 ± 0,7	17,33 ± 0,87	53,07 ± 2,65	20,92 ± 1,05	345,09 ± 17,25
12	183,77 ± 9,19	158,69 ± 7,93	29,49 ± 1,47	64,21 ± 3,21	51,54 ± 2,58	49,94 ± 2,5	368,59 ± 18,43
Blanc	77 ± 3,2	11 ± 0,45	58 ± 3,6	7 ± 0,8	2,5 ± 0,5	5,8 ± 0,1	270 ± 5,2

Annexes

Annexe 4 : Déchets NORM générés par l'industrie pétrolière



Annexes

Annexe 5 : Calcul de l'efficacité

L'efficacité est le rapport entre le nombre de photons mesuré dans un spectre et le nombre de photons émis par l'échantillon.

L'efficacité est obtenue par la relation suivante :

$$\epsilon = \frac{N}{A.t.I} \quad 11$$

Avec :

N : Nombre de coup détectés dans la raie d'énergie étudiée.

A : Activité de la source standard corrigée à la date de comptage en Bq.

I : Probabilité d'émission radioactive de chaque énergie, donnée tabulée.

t : Temps de comptage en seconde.

Standard utilisé

Nature : sol

Radioélément : Eu-152

Géométrie : 20 cc

Activité : 105 Bq en date du 15/11/1995

Période : 13,53

Densité : 1,016 g/cm³

Date du comptage : 27/09/2020

Activité en date du comptage : 118 Bq (29,365 Bq/ml*4,05ml)

Annexes

Energy	Intensity (%)	N	Activity	Time meas (s)	Efficiency
121,7824	28,4	34607	118,91	13989,78	0,0733 ± 0,0037
244,6989	7,54	3674	118,91	13989,78	0,0293 ± 0,0015
344,2811	26,52	9756	118,91	13989,78	0,0221 ± 0,0011
411,126	2,246	441	118,91	13989,78	0,0118 ± 0,0006
443,965	3,1	625	118,91	13989,78	0,0121± 0,0006
778,92	12,94	1657	118,91	13989,78	0,0077 ± 0,0004
867,39	4,23	345	118,91	13989,78	0,0049 ± 0,0002
964,055	14,6	1250	118,91	13989,78	0,0051 ± 0,0003
1112,087	13,56	1106	118,91	13989,78	0,0049 ± 0,0002
1408,022	20,8	1278	118,91	13989,78	0,0037 ± 0,0002

Radionucléide	Energie (KeV)	Efficacité
Pb-210	46,539	0,0187 ± 0,00093
Ra-226	186,21	0,0565± 0,00282
Pb-212	238,632	0,0394± 0,00197
Pb-214	351,925	0,0219± 0,00109
Bi-214	609,318	0,0108± 0,00054
Ac-228	911,16	0,0073± 0,00037
K-40	1460,83	0,0050± 0,00025

Annexes

Annexe 6 : Limites d'exemption de quelque radioélément

Radioélément	Activité spécifique (Bq/g)	Activité (Bq)
Ra-226	10	10000
Rn-222	10	100000000
Pb-210	10	10000
Bi-210	1000	1000000
Po-210	10	10000
Ra-228	10	100000
Ac-228	10	1000000
Th-228	1	10000
Ra-224	10	100000
Rn-220	10000	10000000
Pb-212	10	100000
Bi-212	10	100000

Annexes

Annexe 7 : Paramètres de calcul des activités

210Pb									
Code Ech.	temps comptage (s)	Masse (g)	Intensité	Efficacité	ϕ_c	N réel(cps)	BF	N Net (cps)	Activité (Bq/Kg)
1	85100,93	20,8	0,0425	0,0187	0,0009	271	30	241	171,63 ± 8,58
2	79849,17	20,6	0,0425	0,0187	0,0009	163	28	135	103,47 ± 5,17
3	86082,72	19,5	0,0425	0,0187	0,0009	525	30	495	371,12 ± 18,56
4	165135,62	16,6	0,0425	0,0187	0,0009	124673	57	124616	57199,63 ± 2859,98
5	120408,96	20,1	0,0425	0,0187	0,0009	127	42	85	44,29 ± 2,21
6	86043,49	20,7	0,0425	0,0187	0,0009	224	30	194	137,13 ± 6,86
7	81680,89	24,6	0,0425	0,0187	0,0009	355	28	327	204,54 ± 10,23
8	89199	20,1	0,0425	0,0187	0,0009	332	31	301	211,26 ± 10,56
9	172800	19,2	0,0425	0,0187	0,0009	520	60	460	174,45 ± 8,72
10	84868,09	19,3	0,0425	0,0187	0,0009	132	29	103	78,76 ± 3,94
11	154390,4	19,6	0,0425	0,0187	0,0009	1327	54	1273	529,48 ± 26,47
12	172800	18,9	0,0425	0,0187	0,0009	537	60	477	183,77 ± 9,19

226Ra									
Code Ech.	temps comptage (s)	Masse (g)	Intensité	Efficacité	ϕ_c	N réel(cps)	BF	N Net (cps)	Activité (Bq/Kg)
1	85100,93	20,8	0,03555	0,0565	0,0028	280	51	229	64,48 ± 3,22
2	79849,17	20,6	0,03555	0,0565	0,0028	444	48	396	119,98 ± 6
3	86082,72	19,5	0,03555	0,0565	0,0028	845	51	794	235,40 ± 11,77
4	165135,62	16,6	0,03555	0,0565	0,0028	169601	98	169503	30785,01 ± 1539,25
5	120408,96	20,1	0,03555	0,0565	0,0028	408	72	336	69,16 ± 3,46
6	86043,49	20,7	0,03555	0,0565	0,0028	271	51	220	61,41 ± 3,07
7	81680,89	24,6	0,03555	0,0565	0,0028	315	49	266	65,98 ± 3,3
8	89199	20,1	0,03555	0,0565	0,0028	962	53	909	252,37 ± 12,62
9	172800	19,2	0,03555	0,0565	0,0028	923	103	820	123,04 ± 6,15
10	84868,09	19,3	0,03555	0,0565	0,0028	431	51	380	115,62 ± 5,78
11	154390,4	19,6	0,03555	0,0565	0,0028	1054	92	962	158,27 ± 7,91
12	172800	18,9	0,03555	0,0565	0,0028	1144	103	1041	158,69 ± 7,93

Annexes

212Pb									
Code Ech.	temps comptage (s)	Masse (g)	Intensité	Efficacité	Ge	N réel(cps)	BF	N Net (cps)	Activité (Bq/Kg)
1	85100,93	20,8	0,436	0,0394	0,0020	653	7	646	21,23 ± 1,06
2	79849,17	20,6	0,436	0,0394	0,0020	1056	7	1049	37,12 ± 1,86
3	86082,72	19,5	0,436	0,0394	0,0020	754	7	747	25,88 ± 1,29
4	165135,62	16,6	0,436	0,0394	0,0020	7365	14	7351	156,09 ± 7,8
5	120408,96	20,1	0,436	0,0394	0,0020	413	10	403	9,68 ± 0,48
6	86043,49	20,7	0,436	0,0394	0,0020	1033	7	1026	33,51 ± 1,68
7	81680,89	24,6	0,436	0,0394	0,0020	194	7	187	5,41 ± 0,27
8	89199	20,1	0,436	0,0394	0,0020	1716	8	1708	55,46 ± 2,77
9	172800	19,2	0,436	0,0394	0,0020	1561	15	1546	27,12 ± 1,36
10	84868,09	19,3	0,436	0,0394	0,0020	815	7	808	28,70 ± 1,44
11	154390,4	19,6	0,436	0,0394	0,0020	746	13	733	14,09 ± 0,7
12	172800	18,9	0,436	0,0394	0,0020	1670	15	1655	29,49 ± 1,47

214Pb									
Code Ech.	temps comptage (s)	Masse (g)	Intensité	Efficacité	Ge	N réel(cps)	BF	N Net (cps)	Activité (Bq/Kg)
1	85100,93	20,8	0,356	0,0219	0,0011	495	9	486	35,19 ± 1,76
2	79849,17	20,6	0,356	0,0219	0,0011	610	9	601	46,88 ± 2,34
3	86082,72	19,5	0,356	0,0219	0,0011	1679	9	1670	127,57 ± 6,38
4	165135,62	16,6	0,356	0,0219	0,0011	357392	18	357374	16721,67 ± 836,08
5	120408,96	20,1	0,356	0,0219	0,0011	517	13	504	26,69 ± 1,33
6	86043,49	20,7	0,356	0,0219	0,0011	706	9	697	50,16 ± 2,51
7	81680,89	24,6	0,356	0,0219	0,0011	437	9	428	27,32 ± 1,37
8	89199	20,1	0,356	0,0219	0,0011	1730	10	1720	123,06 ± 6,15
9	172800	19,2	0,356	0,0219	0,0011	1553	19	1534	59,30 ± 2,97
10	84868,09	19,3	0,356	0,0219	0,0011	625	9	616	48,21 ± 2,41
11	154390,4	19,6	0,356	0,0219	0,0011	426	17	409	17,33 ± 0,87
12	172800	18,9	0,356	0,0219	0,0011	1654	19	1635	64,21 ± 3,21

Annexes

214Bi									
Code Ech.	temps comptage (s)	Masse (g)	Intensité	Efficacité	Өс	N réel(cps)	BF	N Net (cps)	Activité (Bq/Kg)
1	85100,93	20,8	0,4549	0,0108	0,0005	203	0	203	23,34 ± 1,17
2	79849,17	20,6	0,4549	0,0108	0,0005	311	0	311	38,48 ± 1,92
3	86082,72	19,5	0,4549	0,0108	0,0005	1021	0	1021	123,80 ± 6,19
4	165135,62	16,6	0,4549	0,0108	0,0005	194287	0	194287	14426,30 ± 721,32
5	120408,96	20,1	0,4549	0,0108	0,0005	230	0	230	19,34 ± 0,97
6	86043,49	20,7	0,4549	0,0108	0,0005	384	0	384	43,88 ± 2,19
7	81680,89	24,6	0,4549	0,0108	0,0005	298	0	298	30,18 ± 1,51
8	89199	20,1	0,4549	0,0108	0,0005	1182	0	1182	134,19 ± 6,71
9	172800	19,2	0,4549	0,0108	0,0005	896	0	896	54,96 ± 2,75
10	84868,09	19,3	0,4549	0,0108	0,0005	334	0	334	41,50 ± 2,08
11	154390,4	19,6	0,4549	0,0108	0,0005	789	0	789	53,07 ± 2,65
12	172800	18,9	0,4549	0,0108	0,0005	827	0	827	51,54 ± 2,58

228Ac									
Code Ech.	temps comptage (s)	Masse (g)	Intensité	Efficacité	Өс	N réel(cps)	BF	N Net (cps)	Activité (Bq/Kg)
1	85100,93	20,8	0,262	0,0073	0,0004	71	0	71	20,82 ± 1,04
2	79849,17	20,6	0,262	0,0073	0,0004	141	0	141	44,67 ± 2,23
3	86082,72	19,5	0,262	0,0073	0,0004	192	0	192	59,64 ± 2,98
4	165135,62	16,6	0,262	0,0073	0,0004	410	1	409	78,01 ± 3,9
5	120408,96	20,1	0,262	0,0073	0,0004	74	1	73	15,83 ± 0,79
6	86043,49	20,7	0,262	0,0073	0,0004	223	0	223	65,31 ± 3,27
7	81680,89	24,6	0,262	0,0073	0,0004	68	0	68	17,57 ± 0,88
8	89199	20,1	0,262	0,0073	0,0004	657	1	656	191,44 ± 9,57
9	172800	19,2	0,262	0,0073	0,0004	397	1	396	62,40 ± 3,12
10	84868,09	19,3	0,262	0,0073	0,0004	158	0	158	50,27 ± 2,51
11	154390,4	19,6	0,262	0,0073	0,0004	122	1	121	20,92 ± 1,05
12	172800	18,9	0,262	0,0073	0,0004	313	1	312	49,94 ± 2,5

Annexes

40K										
Code Ech.	temps comptage (s)	Masse (g)	Intensité	Efficacité	Gc	N réel(cps)	BF	N Net (cps)	Activité (Bq/Kg)	
1	85100,93	20,8	0,1055	0,0050	0,0003	387	4	383	410,24 ± 20,51	
2	79849,17	20,6	0,1055	0,0050	0,0003	355	4	351	404,87 ± 20,24	
3	86082,72	19,5	0,1055	0,0050	0,0003	441	4	437	493,54 ± 24,68	
4	165135,62	16,6	0,1055	0,0050	0,0003	510	8	502	347,40 ± 17,37	
5	120408,96	20,1	0,1055	0,0050	0,0003	377	6	371	290,93 ± 14,55	
6	86043,49	20,7	0,1055	0,0050	0,0003	548	4	544	579,03 ± 28,95	
7	81680,89	24,6	0,1055	0,0050	0,0003	294	4	290	273,80 ± 13,69	
8	89199	20,1	0,1055	0,0050	0,0003	1727	4	1723	1821,68 ± 91,08	
9	172800	19,2	0,1055	0,0050	0,0003	821	8	813	464,54 ± 23,23	
10	84868,09	19,3	0,1055	0,0050	0,0003	434	4	430	497,75 ± 24,89	
11	154390,4	19,6	0,1055	0,0050	0,0003	558	7	551	345,09 ± 17,25	
12	172800	18,9	0,1055	0,0050	0,0003	643	8	635	368,59 ± 18,43	