

# Métrologie de la radioactivité

## Application aux mesures environnementales

### 4.1 Choix des matériaux à mesurer

#### 4.1.1 Gisements de ressources minérales

Une ressource minérale est une concentration de matériau présent naturellement, sous forme, solide, liquide ou gazeuse, à l'intérieur de la croûte terrestre, sous une forme et une quantité telles que son extraction à des fins économiques est effectivement ou potentiellement faisable. En effet, compte tenu de l'étendue de la surface terrestre, et de l'épaisseur de la lithosphère, ces stocks de minéraux représentent des quantités considérables que l'humanité sera toujours très loin d'avoir la capacité d'épuiser. D'autant que la terre est toujours en activité, au plan géodynamique et de la géologie de surface, avec un renouvellement permanent des formations géologiques – et donc des matières premières minérales – que ce soient par des mécanismes endogènes (remontées magmatiques, surrection des montagnes, renouvellement des plaques lithosphériques...) ou exogènes (altération, sédimentation terrestre et marine). Ces ressources ne sont dans l'ensemble pas renouvelables. L'évaluation de la quantité d'une ressource dans une zone donnée dépend de nombreux paramètres du gisement, dont la localisation, la profondeur, la taille, la configuration, la nature minérale, la qualité, la densité, les caractéristiques géologiques, la proximité de ressources voisines.

Les ressources minérales constituent un des éléments clés du développement de l'humanité. De tous temps, les activités humaines ont nécessité l'utilisation de matériaux, pour satisfaire des besoins aussi variés que l'habitat, les travaux publics, le transport,

l'industrie, ou l'agriculture. Dans l'ensemble des matériaux, les ressources minérales occupent une place à part. Elles ont été formées au cours des temps par des processus géologiques, le plus souvent, bien avant l'arrivée de l'homme sur Terre. Le domaine des ressources minérales représente un des volets du grand ensemble de ressources naturelles, à côté des ressources énergétiques et alimentaires, des richesses biologiques, dont la biodiversité, et des ressources que constituent les milieux physiques : sols, eau, atmosphère.

En vue de son histoire géologique de formation, un gisement de ressources minérales constitue un véritable cocktail de différentes substances radioactives. On y trouve notamment du  $^{40}\text{K}$ , du  $^{228}\text{Ra}$ , du  $^{232}\text{Th}$ , mais aussi du  $^{210}\text{Po}$ , du  $^{210}\text{Pb}$  et de  $^{238}\text{U}$  avec des variations spectaculaires d'un gisement à l'autre, et même dans un même gisement. Une des sources de radioactivité dans l'environnement autre que celles d'origine naturelle est principalement due à l'usage étendu de minerais extraits et leurs dérivés pour la production des matériaux que nous utilisons couramment comme par exemple les matériaux de construction (gravier, sable, argile, ciment, plâtre), les engrais agricoles, les métaux, le sel et le gypse, les papiers, les verres, etc., qui ont des applications familières et façonnent notre quotidien.

La demande et l'utilisation de ces produits ne cesse d'augmenter avec le temps. Par ailleurs, les processus physico-chimiques mis en œuvre dans certaines activités industrielles peuvent conduire dans certaines circonstances à une concentration potentielle de ces radionucléides naturels dans les résidus ou les produits finis et semi-finis de ces industries. Bien que les niveaux de radioactivité de ces matériaux NORM reste généralement modérés, une exposition prolongée à ces matériaux peut, dans certains cas particuliers, devenir significative et dépasser les limites légales d'exposition. Ce qui a pour effet d'augmenter les taux d'exposition ainsi que les risques de contamination à la fois sur la population et l'environnement. C'est dans cette perspective que ces matériaux et leurs produits dérivés doivent être contrôlés et examinés et vis-à-vis de la radioactivité d'une manière permanente et régulière. Il est également important de surveiller et d'étudier le devenir (transfert) de ces substances radioactives dans l'environnement (radioécologie), afin de connaître leur impact éventuel sur les populations humaines (radioprotection). À l'issue de la recherche bibliographique menée, nous avons orienté l'échantillonnage vers quelques minéraux de matières premières utilisés couramment dans les domaines de l'industrie des phosphates et la production de matériaux de construction.

#### 4.1.2 Généralités sur les phosphates et la production des engrais

Phosphate naturel (PN) est un terme général qui décrit les assemblages minéraux naturels contenant une concentration élevée de minéraux phosphatés. Le terme se rapporte aussi bien aux minerais phosphatés non enrichis qu'aux produits concentrés. Le phosphate est le composant de ces roches ayant un intérêt agronomique. Plus le contenu en phosphate ( $P_2O_5$ ) sous forme d'apatite est élevé, plus le potentiel économique du minerai est grand. Le phosphate de calcium se trouve dans des roches magmatiques et dans des roches sédimentaires des différents âges. Ces roches peuvent avoir été plus ou moins métamorphosées ou remaniées, altérées ou lessivées.

– **Les gisements sédimentaires** représentent la plus grande partie des réserves mondiales. Ils ont fourni environ 80 à 90 % de la production mondiale ces dernières années [Mineral 2013]. Particulièrement, ces gisements se trouvent dans des formations d'âge géologique très différent, montrent une gamme très large de compositions chimiques et de formes physiques, se trouvent souvent en couches épaisses relativement horizontales, et peuvent être à la base de terrains de recouvrement peu profonds. Les gisements les plus importants sont Cambrien (Chine, Kazakhstan, Vietnam, Mongolie), Permien (Utah, Montana, Idaho, Wyoming aux Etats-Unis), Créatacé supérieur (Moyen-Orient, Egypte), Eocène (gisements d'Afrique du Nord Algérie, Tunisie, Maroc), Mio-Pliocène (Floride et Caroline du Nord aux Etats-Unis). Les matières phosphatées des minerais sédimentaires présente une cristallisation extrêmement fine ; les cristallites ont généralement des dimensions bien inférieures au micron. Dans le réseau de ces micro-cristaux, de très nombreuses substitutions (concernant des sites occupés normalement par P, Ca, F) sont possibles :  $PO_4$  remplacé par  $SO_4$ ,  $CO_3$ , ou  $SiO_4$ , F par OH, Ca par Mg, Al, Fe, K, Na, Sr, U, Th ou des terres rares. Les éléments phosphatés individualisés des minerais sédimentaires sont visibles à l'œil nu ou au microscope et ils se présentent sous différents types que l'on peut classer en fonction de leur forme, de leur taille et de leur structure interne. Les gisements du Djebel Onk font partie des gisements de ce type. Ses ressources peuvent atteindre 2 milliards de tonnes au niveau du bassin de Djebel Onk.

– **Les gisements d'origine magmatique dits ignés** sont les moins nombreux et fournissent environ 10 à 20 % de la production mondiale des concentrés. Le plus important est situé dans la péninsule de Kola, à l'extrême Nord-Ouest de la Russie ; les gisements sont associés à des intrusions alcalines, le plus souvent, il s'agit de syénites néphéliniques à cœur de carbonatites. Parmi les autres gisements de carbonatites à apatite, on trouve les gisements du Canada, Jacupiranga au Brésil, Siilinjärvi en Finlande ou Phalaborwa en Afrique du Sud. Les minerais d'origine magmatiques sont caractérisés par la présence des grains d'apatite bien cristallisés dans le système hexagonal, avec

des dimensions allant de quelques dizaines de microns jusqu'à quelques millimètres. La structure cristallographique permet de distinguer la fluorapatite  $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{F}$ , de l'hydroxyapatite  $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{OH}$  et de la cholroapatite  $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{Cl}$ .

### **La radioactivité naturelle dans l'industrie**

Les procédés de production de certaines activités industrielles peuvent modifier les équilibres physico-chimiques de la radioactivité naturelle contenue dans les matières premières utilisées et la concentrer dans les sous-produits et résidus. Il s'agit alors de radioactivité naturelle technologiquement renforcée. Elle représente un risque éventuellement accru de dissémination dans l'environnement et donc d'exposition humaine, même après l'arrêt de l'activité industrielle. Cette radioactivité naturelle involontairement renforcée provient des industries extractives de minerais et de ressources géologiques ainsi que des étapes successives de séparation, d'épuration, de transformation, et d'utilisation des sous-produits.

Comme mentionné plus haut, certains minerais contiennent par nature des concentrations relativement importantes en substances radioactives naturelles, les minerais de phosphate, les sables au zircon, certains minerais non-ferreux : cette radioactivité se retrouvera dans les produits finis et les résidus du processus. Les industries qui utilisent ces matières sont donc des secteurs à risque : l'industrie des phosphates (production d'acide phosphorique, d'engrais ou autres produits phosphatés), la fonderie et la fabrication de matériaux réfractaires (utilisation des sables au zircon), la métallurgie non-ferreuse primaire (à partir du minerai ou du concentrât).

Les processus physico-chimiques des différentes substances radioactives naturelles (uranium, radium, plomb, polonium,...) étant différents, ces éléments ne vont pas forcément suivre le même chemin dans le processus de transformation. Ils peuvent s'accumuler préférentiellement dans certains résidus ou produits. Alors que dans les matières premières minérales, tous les radionucléides d'une même chaîne de désintégration sont généralement présents avec la même activité (on parle d'équilibre séculaire), cet équilibre est brisé par les processus de transformation physico-chimiques. Par exemple, dans l'industrie des phosphates, l'uranium et le radium sont, au départ, présents dans le minerai de phosphate avec une même concentration d'activité ; dans les processus de transformation, l'uranium va se retrouver dans les produits finis (acide phosphorique ou engrais) tandis que le radium se trouvera dans les résidus (phosphogypse notamment) ou se forme de scallings dans les installations.

On peut ainsi identifier un certain nombre de secteurs industriels à risque, à cause des matières premières utilisées ou/et des processus mis œuvre. La problématique NORM peut également se rencontrer dans d'autres secteurs, vu la diversité des pro-

cessus pouvant mener à une concentration des substances radioactives naturelles.

### 4.1.3 Traitement des minerais et fabrication des engrais

En tant que ressource minérale, le minerai de phosphate est considéré comme un matériau NORM qui contient des quantités significatives de radionucléides primordiaux. Ainsi, des quantités importantes de ces radionucléides peuvent être transférées des minerais aux produits finis et aux résidus. L'industrie des engrais phosphatés est considérée comme une source potentielle de radio-contamination naturelle [Ajmal 2014]. Par conséquent, l'utilisation d'engrais phosphatés dans les activités agricoles pourrait entraîner une migration potentielle des radionucléides des engrais vers le sol et les plantes, et via la chaîne alimentaire, vers les êtres humains ce qui pourrait provoquer des effets sur la santé. Compte tenu des effets néfastes sur la santé humaine dus à l'utilisation croissante d'engrais phosphatés, il est essentiel d'analyser la teneur en radionucléides  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$ , non seulement dans le minerai de phosphate, mais aussi dans différents types d'engrais phosphatés agricoles.

La mise en valeur répond aux critères classiques de l'exploitation minière : adéquation aux besoins du marché et rentabilité économique de l'exploitation. Les réserves se chiffrent en dizaines de milliards de tonnes ou en siècles de consommation. Dans la plupart des cas, les minerais de phosphates ne peuvent pas être utilisés directement ; il convient de les solubiliser par une attaque acide. Néanmoins, une petite partie est utilisée en application directe. Préalablement, les minerais de phosphate doivent être enrichis.

L'objectif principal du traitement des minerais de phosphates est de produire des concentrés utilisables dans l'industrie des engrais pour la production d'acide phosphorique ou d'engrais phosphatés. Ces concentrés doivent avoir une teneur minimale en  $\text{P}_2\text{O}_5$  ( $> 30\%$  d'une façon générale), des teneurs maximales en chlorures, sulfures, matière organique, ainsi que dans les rapports  $\text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{Al}_2\text{O}_3 + \text{MgO}/\text{P}_2\text{O}_5$  ( $< 0,09$  environ) et  $\text{CaO}/\text{P}_2\text{O}_5$  ( $< 1,60$  environ). Pour répondre à ces spécifications, on utilise en général des procédés simples d'enrichissement par voie physique sèche pour les minerais faiblement argileux (broyage sélectif et classifications granulométriques), humide pour les minerais argileux (débouillage et classifications granulométrique) ou flottation. Les minerais d'origine magmatique ne posent en général pas de problèmes d'enrichissement, même pour des teneurs très basses en  $\text{P}_2\text{O}_5$  (4 – 5 %), ce qui n'est pas le cas pour les minerais sédimentaires pour des teneurs minimales de 7 à 15 %  $\text{P}_2\text{O}_5$ , notamment pour les minerais à gangue carbonatée.

Depuis des décennies, les exploitants de gisements sédimentaires ont bénéficié de minerais altérés, faiblement carbonatés ne nécessitant pas de traitements par calcina-

tion ou flottation. Mais cette situation évolue et il convient de rappeler que les trois quarts des réserves en phosphate mondiales sont des minerais carbonatés. Dans ce contexte, le traitement de ces minerais fait encore relativement figure d'exception. En dehors de la calcination à température moyenne qui vise à éliminer la matière organique et la pyrite par exemple à Youssoufia (Ganntour, Maroc) et en Caroline du Nord (États-Unis), la calcination sur carbonates existe notamment dans la petite usine de Vernal (Phosphoria Formation) aux États-Unis, au Djebel Onk (Algérie), en Égypte et au Maroc. La calcination est basée sur la dissociation des carbonates à une température comprise entre 700 et 1000 °C suivie d'une hydratation de la chaux et de la magnésie libre contenues dans la décharge du four.

Par contre la flottation des carbonates est en développement. C'est assurément une voie d'avenir, même si elle a subi un échec sur le gisement de Karatau (Kazakhstan) où elle a été arrêtée à la fin des années 80. Diverses usines existent déjà au Moyen Orient et aux États-Unis. Une grosse usine a été installée en Chine et le projet d'Al Jalamid en Arabie Saoudite prévoit aussi un traitement dans une très grosse installation (5 Mt/an de concentrés). Au fil du temps, divers procédés ont été expérimentés : flottation inverse (flottation des carbonates et dépression des phosphates), flottation directe des phosphates, flottation combinée anionique des carbonates et cationique des phosphates<sup>6</sup>, etc. Un développement récent a porté sur l'utilisation d'un nouveau collecteur (acides gras sulfonés).

La teneur en phosphate est exprimée soit en pentoxyde de phosphore ( $P_2O_5$ ), soit en phosphate tricalcique (TCP ou BPL = Bone Phosphate of Lime = phosphate de chaux des os =  $P_2O_5 \times 2,1853$ ). Ce terme rappelle l'époque où les os étaient la source principale de phosphate dans l'industrie des engrais. Les fabricants d'acide phosphorique et d'engrais phosphatés demandent normalement une teneur minimum de 28 pour cent de  $P_2O_5$  et la plupart des catégories de phosphates commercialisées contiennent plus de 30 pour cent de  $P_2O_5$  (65 pour cent de BPL). Pour répondre à cette exigence, la plupart des minerais de phosphate subissent un traitement comme nous l'avons vu plus haut.

### Phosphate de monoammonium

Le phosphate de monoammonium, phosphate monoammonique ou dihydrogénophosphate d'ammonium, est un composé chimique de formule  $NH_4H_2PO_4$ . On le désigne également par le sigle MAP, de l'anglais Monoammonium phosphate (MAP). Il s'agit d'un sel d'ammoniac  $NH_3$  et d'acide phosphorique  $H_3PO_4$ , constitué de cations ammonium  $NH_4^+$  et d'anions dihydrogénophosphate  $HPO_4^{2-}$ . Il se forme à l'état de poudre cristalline lorsqu'on mélange deux solutions d'ammoniac et d'acide phospho-

rique, en même temps que le phosphate d'ammonium  $(\text{NH}_4)_3\text{PO}_4$  et le phosphate de diammonium  $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$  en fonction de la concentration relative en ammoniac et en acide phosphorique; il apparaît dès que la solution devient acide :



Il entre dans la composition d'engrais pour l'agriculture, où il permet d'apporter de l'azote et du phosphore sous une forme assimilable par les plantes, ainsi que dans les poudres pour extincteurs, typiquement mélangé sous une forme fluidifiée à du sulfate d'ammonium  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ .

Les cristaux de phosphate de monoammonium sont biréfringents, et à ce titre fréquemment utilisés en optique, présentant, aux longueurs d'onde de la lumière visible, les indices de réfraction  $n_o = 1,522$  et  $n_e = 1,478$ . Ces cristaux sont également piézo-électriques, propriété mise à profit dans les transducteurs électroacoustiques de sonars, l'alternative étant les transducteurs à magnétostriction. Les cristaux de phosphate de monoammonium ont largement remplacé ceux de quartz  $\text{SiO}_2$  et de sel de Seignette (tartrate double de sodium et de potassium,  $\text{KOOOC-CHOH-CHOH-COONa}$ ) au milieu du siècle dernier car ils sont plus faciles à travailler et ne sont pas déliquescents.

### Phosphate de diammonium

Le phosphate de diammonium ou phosphate diammonique ou hydrogénophosphate d'ammonium, est un composé chimique de formule  $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ . Il s'agit d'un sel d'ammoniac  $\text{NH}_3$  et d'acide phosphorique  $\text{H}_3\text{PO}_4$ , constitué de cations ammonium  $\text{NH}_4^+$  et d'anions hydrogénophosphate  $\text{HPO}_4^{2-}$ . Il se forme à l'état de poudre cristalline lorsqu'on mélange deux solutions concentrées d'ammoniac et d'acide phosphorique, en même temps que le phosphate d'ammonium  $(\text{NH}_4)_3\text{PO}_4$  et le phosphate de monoammonium  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  en fonction de la concentration relative en ammoniac et en acide phosphorique :



En agriculture, le phosphate de diammonium est également appelé de façon indifférente DAP (de l'anglais Diammonium Phosphate) ou 18-46-0 (18 % N, 46 %  $\text{P}_2\text{O}_5$ , 0 %  $\text{K}_2\text{O}$ ). Il se dissout très facilement dans l'eau, donnant une solution aqueuse faiblement basique de pH compris entre 7,6 et 8,2 pour une concentration de 100 g de DAP par litre d'eau. Il est utilisé principalement comme engrais et comme retardateur de flamme pour le bois (par exemple dans la lutte contre les incendies de forêt). On l'utilise également comme source d'azote et de phosphore pour l'élevage de la levure, comme flux de brasage, ou encore comme catalyseur dans la production d'aminoplastes.

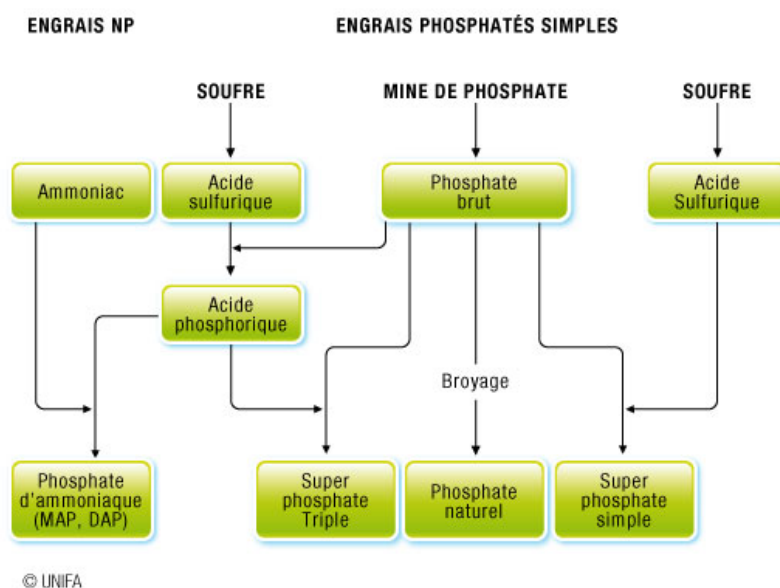


FIG. 4.1 – Principe de fabrication des engrais superphosphatés

### Superphosphates

Un superphosphate est un engrais minéral phosphaté. Il intervient dans divers processus métaboliques des plantes. Il est important pour leurs racines et pour leur croissance. Les besoins en phosphore varient en fonction des espèces. Des plantes telles que la pomme de terre, le colza et la luzerne ont des besoins très élevés en phosphore, tandis que d'autres comme l'avoine et le tournesol ont des besoins relativement faibles.

Les superphosphates renferment de l'acide phosphorique soluble dans l'eau, accompagné d'une partie soluble seulement dans le citrate, et même d'une certaine proportion insoluble. Selon la teneur en phosphore quantifiée en  $P_2O_5$ , (pentoxyde de phosphore), on distingue le superphosphate simple SSP, le superphosphate triple TSP et le superphosphate enrichi ESP :

- **Le superphosphate simple (SSP)** : est obtenu par attaque chimique acide d'une roche phosphatée (comme l'apatite) par de l'acide sulfurique. Il contient 16 à 20 % de  $P_2O_5$ . Il fut le premier engrais à être synthétisé. Le superphosphate simple se présente sous forme de granulés de couleur grise. En plus du phosphate, le superphosphate simple apporte à la plante du soufre et du calcium.
- **Le superphosphate triple (TSP)** : est obtenu par attaque chimique acide d'une roche phosphatée par de l'acide phosphorique. Il s'agit de la forme de superphosphate la plus efficiente. Sa teneur en  $P_2O_5$  est de l'ordre de 45 %. Sa teneur élevée en phosphate et sa très grande solubilité en font un engrais très



populaire. Le phosphate qu'il contient est rapidement mis à la disposition des plantes.

- **Le superphosphate enrichi (ESP)** : est obtenu par l'attaque combinée de ces deux acides.

La notion de superphosphate tient au fait que sous cette forme acide, ces phosphates peuvent être plus facilement libérés en milieu aqueux sous forme d'ions phosphates libres, et seront plus faciles à fixer par la plante et plus efficaces et plus rapides en tant qu'engrais, avant qu'ils soient lessivés et transportés dans les eaux de drainage, rivières et nappes phréatiques. Ils constituent la principale catégorie d'engrais phosphatés, et celle qui est le plus rapidement assimilée par les plantes. Ils donnent des résultats supérieurs aux phosphates simples, notamment au début de la végétation à cause surtout de la diffusion plus parfaite dans la couche arable de l'acide phosphorique soluble, car l'important est de placer cet acide à la portée des racines. Ils sont utilisables sur tous types de cultures et tous types de sols. Ils s'emploient à raison de 200 à 500 kg à l'hectare.

Les superphosphates simples SSP, ESP apportent aussi du soufre, utile à certaines cultures. Ils sont souvent employés comme fumure de fond. Compte tenu de leur faible teneur en phosphore, ils sont souvent fabriqués ou employés près des lieux de disponibilité en minerai ou comme matières premières pour la fabrication d'engrais complexes NP, PK, NPK.

#### **Engrais minéraux composés**

Les engrais composés associent plusieurs matières premières pour constituer des formules PK, NP, NK, NPK apportant plusieurs éléments nutritifs avec souvent du soufre, du magnésium et des oligo-éléments. L'agriculteur gagne du temps en apportant tous ces éléments en une seule fois. Les nombreuses formules proposées répondent localement aux besoins des sols et des cultures. Elles sont principalement proposées sous forme solides, mais peuvent exister en liquide sous forme de solutions claires (dont le dosage peut être exprimé aux 100 kilos ou aux 100 litres) ou de suspension. Parmi les engrais composés, on distingue essentiellement les engrais ternaires NPK. Ces derniers sont généralement apportés avant le semis ou avant la plantation et sont souvent incorporés au sol par les dernières préparations de sol. Selon les procédés de fabrication, on classe différents types d'engrais composés :

**Les engrais composés obtenus par réaction chimique :** Par réaction entre matières premières et produits intermédiaires, phosphates naturels, ammoniac, acides nitrique, sulfurique et phosphorique, chlorure et sulfate de potassium, on obtient des

engrais ternaires NPK sous forme de granules. Il y a plusieurs procédés de granulation des engrais complexes NP, NPK qui diffèrent par la nature des matières premières utilisées. Une des plus abouties utilise la liqueur de nitrate d'ammonium comme source d'azote. Certaines formulations peuvent incorporer également du sulfate d'ammonium broyé ou fabriqué in-situ dans le granulateur par neutralisation de l'acide sulfurique ( $H_2SO_4$ ) par l'ammoniac ( $NH_3$ ).

La source de  $P_2O_5$  peut être pour partie le superphosphate simple pour sa grande vertu à granuler, mais la majeure partie (dans le cas de NPK à fort dosage  $P_2O_5$ ) vient du phosphate d'ammonium (phosphate mono ou diammonique, MAP ou DAP) fabriqué in-situ dans le granulateur par neutralisation de l'acide phosphorique ( $H_3PO_4$ ) par l'ammoniac ( $NH_3$ ) ou par ajout de sel solide broyé. La source de  $K_2O$  est le plus souvent le chlorure de potassium (KCl) mais parfois, pour des formulations pauvres en chlore, le sulfate de potassium ( $K_2SO_4$ ) est utilisé.

La granulation des engrais complexes est une technique délicate qui doit prendre en compte, en fonction de la formule choisie, le pH final, le bilan eau/vapeur (matières premières solides ou liquides), le bilan thermique de l'opération (présence ou non de réactions de neutralisation exothermiques) et la faculté des produits à granuler ou non.

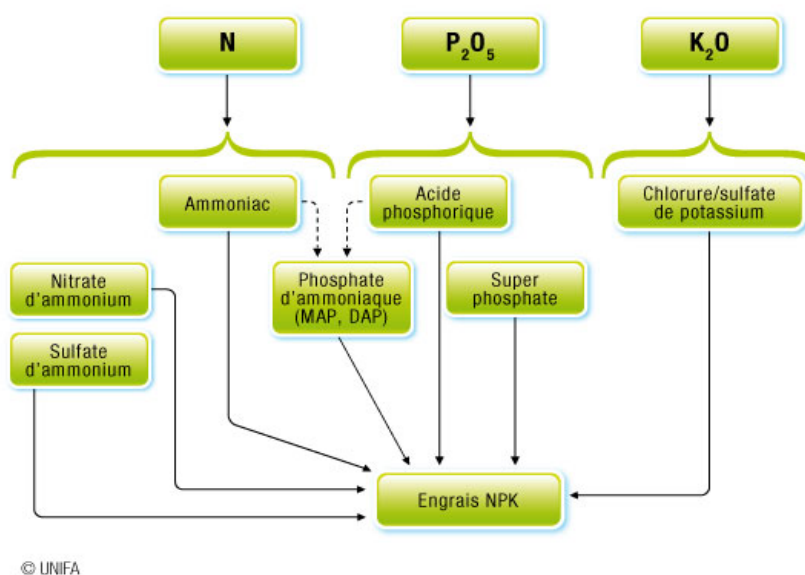


FIG. 4.2 – Principe de fabrication des engrais NPK, procédé nitrique

**Les engrais composés de mélange dits de «bulk-blending» :** Les engrais simples ou composés déjà granulés ou compactés sont mélangés entre eux pour constituer une nouvelle formule. Les particules peuvent être de taille et de formes différentes.

Leur contenu en éléments nutritifs est différent de celui de la formule déclarée après mélange.

Exemple : à partir d'Urée granulée (46 % N) + phosphate d'ammoniaque granulé (18 % N- 46 % P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>) + Chlorure de potassium compacté (60 % K<sub>2</sub>O) on obtient une gamme d'engrais composés NPK de mélange de titre aussi varié que 19-19-19, 25-15-15 ou 10-20-30. Si cette technique de mélange a l'avantage de produire de nombreuses formules s'adaptant aux besoins locaux, elle doit s'accompagner de précautions dans le choix des engrais de base et dans la qualité du mélange. Les engrais doivent être compatibles entre eux sous l'angle chimique et physique. Les granulométries doivent être proches et suffisamment resserrées. Il n'est pas recommandé d'épandre ces engrais composés de mélange à des largeurs de plus de 28 mètres compte tenu du comportement balistique différent des particules variables en densité et dans leur forme. La projection des différentes particules du mélange à des largeurs variables ne garantit plus la répartition en tout point de la parcelle de la formule déclarée.

#### **4.1.4 Le phosphore dans le système sol-plante**

Le phosphore (P) est un élément qui est largement distribué dans la nature. Il est considéré, avec l'azote (N) et le potassium (K), comme un constituant fondamental de la vie des plantes et des animaux. Le phosphore a un rôle dans une série de fonctions du métabolisme de la plante et il est l'un des éléments nutritifs essentiels nécessaires pour la croissance et le développement des végétaux. Il a des fonctions à caractère structural dans des macromolécules telles que les acides nucléiques et des fonctions de transfert d'énergie dans des voies métaboliques de biosynthèse et de dégradation. A la différence du nitrate et du sulfate, le phosphate n'est pas réduit dans les plantes mais reste sous sa forme oxydée la plus élevée [Marschner 1993].

Le phosphore est absorbé principalement pendant la croissance végétative et, par la suite, la majeure partie du phosphore absorbé est transférée dans les fruits et les graines pendant les étapes de reproduction. Des plantes déficientes en phosphore montrent un retard de croissance (réduction de la croissance des cellules et des feuilles, de la respiration et de la photosynthèse), et souvent une couleur vert foncé (concentration plus élevée en chlorophylle) et une coloration rougeâtre (augmentation de la production d'anthocyanes). Il a été signalé que le niveau de l'approvisionnement en phosphore pendant les étapes reproductrices règle la partition des photosynthétats entre les feuilles-sources et les organes reproducteurs, ceci étant essentiel pour les légumineuses fixatrices d'azote [Marschner 1993]. Des animaux et des êtres humains en bonne santé demandent également des quantités adéquates de phosphore dans leur nourriture pour que leurs processus métaboliques soient normaux. Cet élément nutritif est

absorbé par les plantes dans la solution du sol en tant qu'anion orthophosphate monovalent ( $\text{H}_2\text{PO}_4$ ) et divalent ( $\text{HPO}_4$ ), chacun représentant 50 % du phosphore total à un pH proche de la neutralité (pH 6 à 7). A pH 4-6,  $\text{H}_2\text{PO}_4$  représente environ 100 pour cent du phosphore total en solution. A pH 8,  $\text{H}_2\text{PO}_4$  représente 20 pour cent et  $\text{HPO}_4$  80 pour cent du phosphore total [Black 1968].

Quand un engrais phosphaté hydrosoluble est appliqué au sol, il réagit rapidement avec les composants du sol. Les produits en résultant sont des composés phosphatés modérément solubles et du phosphore adsorbé sur les particules colloïdales du sol [FAO 1984]. Une faible concentration en phosphore dans la solution du sol est habituellement adéquate pour la croissance normale des plantes. Par exemple, Fox et Kamprath (1970) et Barber (1995) ont suggéré qu'une concentration de 0,2 ppm de phosphore était adéquate pour une croissance optimale. Cependant, pour que les plantes absorbent les quantités totales de phosphore nécessaires afin de donner de bons rendements, la concentration en phosphore de la solution du sol en contact avec les racines doit être maintenue pendant tout le cycle de croissance.

En culture continue, des apports de phosphore, en particulier d'engrais hydrosolubles, doivent être effectués pour maintenir le statut phosphaté du sol pour les sols fertiles ou augmenter celui des sols ayant une faible fertilité phosphatée naturelle. Par conséquent, le sol, la culture, l'eau, les méthodes de gestion des engrais phosphatés, les conditions climatiques, etc. sont des facteurs importants à considérer quand on essaye de formuler des recommandations de fertilisation phosphatée et obtenir des réponses adéquates des rendements des cultures.

#### **4.1.5 Matériaux de construction**

Les matériaux de construction représentent une source de rayonnement non négligeable car ils sont produits à partir de roches et de sols qui contiennent de la radioactivité à des niveaux variables en fonction de leur origine. La valeur moyenne pondérée mondiale du débit de dose absorbée dans l'habitation est de  $84 \text{ nGy.h}^{-1}$

Les radionucléides naturels primordiaux (uranium-238 et descendants, thorium-232 et descendants, potassium-40) sont omniprésents dans la croûte terrestre et les matériaux de construction. Ils sont à l'origine des principales voies d'exposition à la radioactivité naturelle, par :

- inhalation du radon, gaz radioactif naturel dont les deux principaux isotopes sont issus de la désintégration de l'uranium-238 (radon 222) et du thorium-232 (radon 220),
- irradiation externe induite par les rayonnements provenant des radionucléides contenus dans le sol et les matériaux de construction

### Le marbre

Le marbre est une roche métamorphique dérivée du calcaire, existant dans une grande diversité de coloris, pouvant présenter des veines, ou marbrures (veines et coloris sont dus à des inclusions d'oxydes métalliques, le plus souvent). Certains types de marbres portent des noms particuliers, par exemple le cipolin ou la griotte. Certains marbres, comme le vert antique, composés de calcaire et de serpentines, sont des ophicalces. Alors la formule chimique du marbre est  $(\text{CaCO}_3)$  et la densité est environ 2,7 et 2,8  $g.cm^{-3}$ . Les principaux gisements de marbre en Algérie sont :

- Gisement de marbre de Filfila (Skikda, Nord-Est algérien) : Marbre blanc de grande qualité.
- Gisement de marbre de Kriste : Marbre rouge, jaune et rose.
- Gisement d'onyx de Mahouna : Onyx rubané polychrome.
- Gisement d'onyx de Bouhnifia : Onyx rose et gris.
- Gisement de travertin de Takbalet : De couleur jaune.

Le Marbre algérien, dans toutes ses variétés et couleurs est très apprécié en Europe (Espagne, Italie, France) et dans les pays du Moyen Orient. Dans cette étude, on s'est particulièrement intéressé par le gisement de Filfila.

### Le plâtre

Le plâtre (Gypsum) est un matériau de construction ignifuge. Il est utilisé sous forme de pâte constituée d'un mélange de poudre et d'eau, ou préparé sous forme de plaques. La matière première est, à l'origine, un sulfate de calcium semi hydraté. Maintenant, de nombreux adjuvants entrent dans la composition du plâtre. Alors la formule chimique du plâtre est  $(\text{CaSO}_4)$  avec la densité est de l'ordre de 2,79  $g.cm^{-3}$ .

### Le ciment

Le ciment (du latin caementum, signifiant moellon, pierre de construction) est une matière pulvérulente, formant avec l'eau ou avec une solution saline une pâte plastique liante, capable d'agglomérer, en durcissant, des substances variées. Il désigne également, dans un sens plus large, tout matériau interposé entre deux corps durs pour les lier.

La composition de base des ciments actuels est un mélange de silicates et d'aluminates de calcium, résultant de la combinaison de la chaux (CaO) avec de la silice ( $\text{SiO}_2$ ), de l'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), et de l'oxyde de fer ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ). La densité du ciment est environ de 3,1  $g.cm^{-3}$ .

### L'argile

L'argile désigne une matière rocheuse naturelle à base de silicates ou d'aluminosilicates hydratés de structure lamellaire, provenant en général de l'altération de silicates à charpente tridimensionnelle, tels que les feldspaths. Elle peut être une matière localement abondante, très diverse, traitée ou raffinée avant emploi, à la fois meuble ou plastique (souvent après addition d'eau) ou à pouvoir desséchant, absorbant ou dégraissant, voire à propriétés collantes ou encore réfractaires, pour servir par exemple autrefois selon des usages spécifiques, souvent anciens, au potier et au briquetier, au maçon et au peintre, au teinturier et au drapier, au verrier et à l'ouvrier céramiste. En réalité, le terme issu du latin *argilla* peut s'appliquer au choix à un minéral argileux et à un ensemble de minéraux argileux, ainsi qu'à diverses roches composées pour l'essentiel de ces minéraux. Les roches de la classe des lutites peuvent être l'argilite, l'argilolite ou argilotite, les shales à l'exclusion des schistes métamorphisés. Les argiles sont des roches sédimentaires clastiques. Lorsqu'elles renferment du calcaire, trois sous-classes sont définies entre le pôle argile et le pôle calcaire en fonction de l'augmentation de la teneur en calcaire : argile calcaire puis marne et enfin calcaire argileux. Les argiles riches en silice gélatineuse, soluble dans les alcalis, se nomment gaizes. Le limon ou le lehm désignent des argiles renfermant des particules siliceuses et accessoirement des pigments minéraux comme la limonite ou la goethite. Le loess est un dépôt de couleur jaunâtre d'origine paléoglaciale composé principalement d'argiles et de fines particules calcaires et siliceuses.

### Le granite

Le granite est une roche plutonique magmatique à texture grenue, riche en quartz, qui comporte plus de feldspath alcalin que de plagioclase. Il est caractérisé par sa constitution en minéraux : quartz, feldspaths potassiques (orthoses) et plagioclases, micas (biotite ou muscovite). Le granite et ses roches associées forment l'essentiel de la croûte continentale de la planète. C'est un matériau résistant très utilisé en construction, dallage, décoration, sculpture, sous l'appellation granit.

Le granite est le résultat du refroidissement lent, en profondeur, de grandes masses de magma intrusif qui formeront le plus souvent des plutons, ces derniers affleurant finalement par le jeu de l'érosion qui décape les roches sus-jacentes. Ces magmas acides (c'est-à-dire relativement riches en silice) sont essentiellement le résultat de la fusion partielle de la croûte terrestre continentale. Certains granites (plagiogranites) rencontrés en petits plutons dans la croûte océanique sont, quant à eux, le résultat de la différenciation ultime de magmas basiques. Ses minéraux constitutifs sont principalement du quartz, des micas (biotite ou muscovite), des feldspaths potassiques (orthoses)

et des plagioclases. Ils peuvent contenir également de la hornblende, de la magnétite, du grenat, du zircon et de l'apatite. On dénombre aujourd'hui plus de 500 couleurs de granite différentes. Les roches volcaniques correspondantes sont les rhyolites. La composition chimique moyenne du granite est : 74,5 % de  $\text{SiO}_2$ , 14 % de  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , 9,5 % de  $(\text{Na}_2\text{O}, \text{K}_2\text{O})$ , 2 % d'oxydes (Fe, Mn, Mg, Ca) et de densité moyenne :  $2,7 \text{ g.cm}^{-3}$ .

### **Le minerai de fer**

Le minerai de fer est une roche contenant du fer, généralement sous la forme d'oxydes, comme l'hématite. La teneur en fer est considérablement variable dans les minerais selon le minéral ferrifère, sachant également que l'isomorphisme, presque toujours présent dans les minéraux naturels, réduit la teneur théorique. Dans la nature les minerais de fer d'exploitation sont essentiellement des oxydes : notamment l'hématite  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , la magnétite  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  et la limonite  $\text{HFeO}_2$ . En Algérie, le gisement fer de la mine de l'Ouenza est situé à 120 km au Sud Est de Annaba et à 80 km au nord de Tébessa. Il est aussi limité à l'est par la frontière Algéro-tunisienne et au nord par la wilaya de Souk-Ahras. La mine de l'Ouenza est l'une des plus importantes unités de production de fer dans tout le territoire Algérien.

## **4.2 Procédure expérimentale**

### **4.2.1 Préparation et conditionnement des échantillons**

Afin de mesurer la radioactivité naturelle, plusieurs échantillons géologiques ont été collectés dans différentes régions de l'Algérie. Ces derniers peuvent se classer en deux catégories :

- Echantillons phosphatés : regroupant deux minéraux phosphatés (phosphate brut) et six engrais phosphatés (produits dérivés du mineral phosphaté). Le tableau 4.1 regroupe l'ensemble des échantillons phosphatés mesurés ainsi que leur origine ou leur provenance [Boumala 2018].
  
- Echantillons de matériaux de construction et matières premières : marbre, granite jaune et noir, plâtre, argile, ciment gris, fer brut. Le tableau 4.2 montre l'ensemble des échantillons de matériaux de construction collectés ainsi que leur provenance.

Les échantillons de forme et de géométrie différentes, dont l'activité sera déterminée, présentent une distribution de radioactivité hétérogène. Les radioéléments recherchés sont le  $^{226}\text{Ra}$ , le  $^{232}\text{Th}$  et le  $^{40}\text{K}$ . Pour obtenir des échantillons homogènes, ces

Echantillons phosphatés	Provenance
Posphate brut 1 (PO1)	Mine de Djebel Onk
Posphate brut 2 (PO2)	Mine de Bordj Ghedir
Phosphate monoammonique (MAP)	Importé
Phosphate diammonique (DAP)	Importé
Engrais phosphatés composés (NPK)	Produit local (Fertial SPA)
Engrais phosphatés composés (NPKs)	Produit local (Fertial SPA)
Superphosphate simple (SSP)	Produit local (Fertial SPA)
Superphosphate triple (TSP)	Produit local (Fertial SPA)

TAB. 4.1 – Provenance des échantillons phosphatés analysés

Matériaux de construction	Provenance
Marbre	Gisement de marbre de Filfila (Skikda)
Granite jaune	Importé de l'Italie
Granite noir	Importé de l'Italie
Plâtre	Gisement de gypse à Deifel (Ouled Djellal)
Argile	Gisement d'argile à Ibn Ziad (Constantine)
Ciment gris	Ciment marchand (Constantine)
Fer brut	Gisement de fer à l'Ouenza (Tebessa)

TAB. 4.2 – Provenance des échantillons de matériaux de construction analysés

derniers sont séchés à 100 °C pendant 24 heures, puis broyés et tamisés (200  $\mu m$ ). Avant toute mesure par spectrométrie gamma, les échantillons tamisés ont été conditionnés et scellés dans des conteneurs standardisés SG50 étanches au radon pendant un mois, pour obtenir l'équilibre séculaire correspondant à 7 demi-vies de  $^{222}\text{Rn}$  (3,8 jours) entre les radionucléides. Cette étape est nécessaire pour veiller à ce que le radon est confiné dans le volume et les descendants resteront également dans l'échantillon.

#### 4.2.2 Mesures spectrométriques

Chaque échantillon préparé a été mesuré sous la même configuration géométrique d'étalonnage. L'analyse a été effectuée par spectrométrie gamma avec le détecteur BEGe avec un temps d'acquisition moyen de 86400 secondes.

Les concentrations d'activité correspondants aux radionucléides  $^{226}\text{Ra}$  et  $^{232}\text{Th}$  dans chaque échantillon ont été calculées de manière indirecte à partir de la valeur moyenne pondérée des activités spécifiques de leurs descendants à l'équilibre séculaire. Après la mesure et la soustraction du bruit de fond, les concentrations d'activité ont été estimées comme suit [Amrani 2001] :



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

- les deux raies d'énergie 295,2 keV (19,2 %) et 351,9 (37,1 %) keV du  $^{214}\text{Pb}$  ;
- les raies spécifiques du  $^{214}\text{Bi}$  : 609,3 keV (46,1 %), 1120,3 keV (15 %) et 1764,5 keV (15,4%) ;

b) La concentration du  $^{232}\text{Th}$  a été également calculée comme la moyenne pondérée de l'activité déterminée en utilisant les raies d'énergie caractéristiques :

- du  $^{208}\text{Tl}$  : 583,19 keV (86 %) et 2614,51 keV (99,79 %) ;
- de l' $^{228}\text{Ac}$  : 338,4 keV (12 %) et 911,2 keV (29 %) ;
- du  $^{212}\text{Pb}$  à 238,6 keV (43,6 %),

c) La concentration du  $^{40}\text{K}$  a été déterminée directement par la mesure de la raie d'énergie caractéristique à 1460,8 keV (10,6 %).

Le tableau résume l'ensemble des radionucléides des familles naturelles mesurables par la technique de spectrométrie  $\gamma$

### 4.2.3 L'activité minimale détectable

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

## 4.3 Résultats et discussions

### 4.3.1 Concentrations d'activité des radionucléides $^{226}\text{Ra}$ , $^{232}\text{Th}$ et $^{40}\text{K}$

En utilisant la technique de spectrométrie gamma, les concentrations d'activité des radionucléides primordiaux  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  ont été déterminées (tableau 4.3 et tableau 4.6), pour l'ensemble des échantillons mesurés.

### Echantillons phosphatés

D'après les résultats obtenus (tableau 4.3), nous pouvons constater que la radioactivité des minéraux PO1 et PO2 est principalement due aux radionucléides des séries de l' $^{238}\text{U}$ , en particulier le  $^{226}\text{Ra}$ , et du  $^{232}\text{Th}$ . Les concentrations du  $^{226}\text{Ra}$  dans PO1 et PO2 sont  $143 \pm 7$  et  $366 \pm 17$  Bq.kg $^{-1}$ , respectivement. Ces valeurs indiquent qu'il existe une différence significative de la teneur de ce radionucléide entre PO1 et PO2, puisque la concentration du  $^{226}\text{Ra}$  dans PO2 est environ 2,5 fois plus élevée que celle du PO1. Le  $^{232}\text{Th}$  montre une concentration très élevée dans le PO1 ( $382 \pm 14$  Bq.kg $^{-1}$ ), cependant, il se présente en très faible valeur dans PO2 ( $5 \pm 1$  Bq.kg $^{-1}$ ).

Echantillon mesuré	Concentration d'activité (Bq.kg <sup>-1</sup> )		
	<sup>226</sup> Ra	<sup>232</sup> Th	<sup>40</sup> K
PO1	143 ± 7	382 ± 14	19 ± 2
PO2	366 ± 17	5 ± 1	26 ± 10
NPK	149 ± 6	14 ± 3	3782 ± 250
NPKs	7 ± 1	3 ± 1	3142 ± 222
MAP	5 ± 1	15 ± 2	52 ± 11
DAP	69 ± 3	8 ± 1	50 ± 7
SSP	132 ± 4	12 ± 3	526 ± 39
TSP	156 ± 7	16 ± 2	534 ± 43

TAB. 4.3 – Concentration d'activités de Ra-226, Th-232 et K-40 dans échantillons phosphatés

Concernant le <sup>40</sup>K, les concentrations d'activité obtenues sont comparables pour les deux minéraux PO1 et PO2.

Les limites d'activité maximales admissibles sont 35, 35 et 400 Bq.kg<sup>-1</sup>, respectivement pour le <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th et <sup>40</sup>K [UNSCEAR 2000]. Les concentrations du <sup>226</sup>Ra et du <sup>232</sup>Th obtenues pour le PO1 dépassent ces limites. Pour PO2, seules les concentrations du <sup>226</sup>Ra qui sont plus élevées que les niveaux d'activité admissibles puisque la concentration de <sup>232</sup>Th était faible. Quant au <sup>40</sup>K, les concentrations obtenues étaient inférieures aux niveaux admissibles pour les deux échantillons.

La figure 4.3 montre la différence des concentrations d'activités du <sup>40</sup>K dans les échantillons d'engrais phosphatés, étant plus élevés que la valeur moyenne admissible de 400 Bq.kg<sup>-1</sup>. Tandis que les activités du <sup>226</sup>Ra et du <sup>232</sup>Th se trouvent faibles et dans les mêmes proportions que les valeurs limites, à l'exception les superphosphates TSP et SSP pour lesquels les valeurs sont nettement supérieures aux limites 35 et 35 Bq.kg<sup>-1</sup>.

En outre, le tableau 4.3 énumère les valeurs des concentrations d'activité spécifique dans les engrais phosphatés. On peut voir que ces valeurs variaient de 5 ± 1 à 156 ± 7 pour le <sup>226</sup>Ra, de 3 ± 1 à 16 ± 2 pour le <sup>232</sup>Th et de 50 ± 7 à 3782 ± 250 Bq.kg<sup>-1</sup> pour le <sup>40</sup>K. On retrouve donc l'ensemble des radioéléments appartenants aux familles naturelles <sup>238</sup>U, <sup>232</sup>Th et <sup>40</sup>K. En examinant ces résultats, on peut tirer comme conclusion : les deux fertilisants NPK et NPKs présentent les niveaux d'activités les plus élevées (3782 ± 250 et 3142 ± 222 Bq.kg<sup>-1</sup>) par rapport aux autres radionuclides identifiés, étant plus élevés que la valeur moyenne admissible de 400 Bq.kg<sup>-1</sup>, tandis

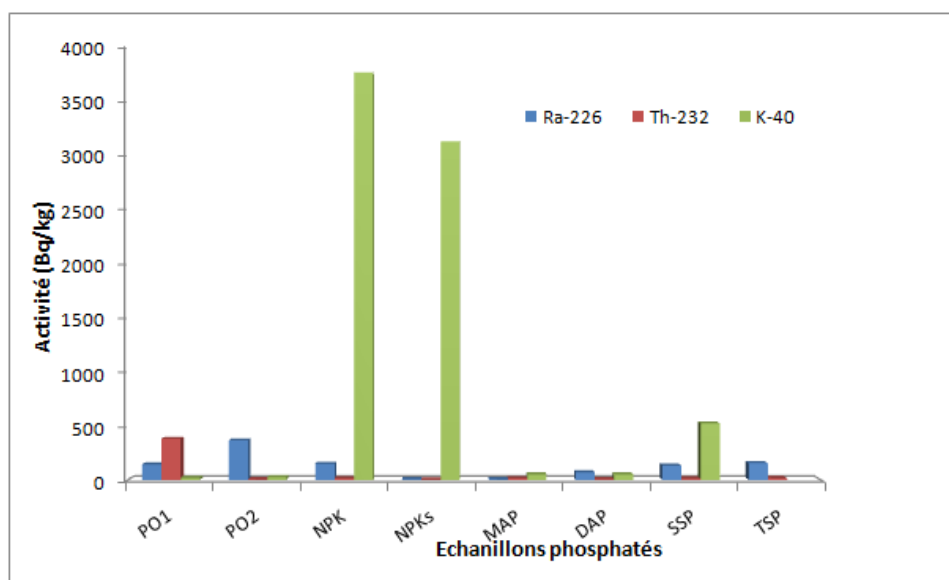


FIG. 4.3 – Comparaison des concentrations d’activités Ra-226, Th-232 et K-40 dans les échantillons d’engrais phosphatés

que l’engrais DAP présentait la valeur la plus faible pour le  $^{40}\text{K}$ . Les activités du  $^{226}\text{Ra}$  et du  $^{232}\text{Th}$  se trouvent faibles et dans les mêmes proportions que les valeurs limites, à l’exception les superphosphates TSP et SSP pour lesquels ces valeurs sont nettement supérieures aux limites  $35$  et  $35 \text{ Bq.kg}^{-1}$ . En plus, les concentrations d’activité du  $^{226}\text{Ra}$  dans tous les engrais étudiés, à l’exception de l’engrais MAP, étaient plus élevées que celles du  $^{232}\text{Th}$ .

Les concentrations d’activité de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  en  $\text{Bq.kg}^{-1}$  dans les minerais de phosphate étudiés ont été comparées avec d’autres résultats rapportés dans différentes études menées dans d’autres pays à travers le monde. Le tableau 4.4 résume ces résultats, où nous pouvons voir que la variation des niveaux de radioactivité naturelle pour tous les radionucléides observés sur différents sites d’échantillonnage était principalement due aux différences géologiques et géographiques entre toutes les zones minières.

Le tableau 4.5 montre la comparaison des concentrations d’activité de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  obtenus pour tous les engrais phosphatés analysés avec celles rapportées dans d’autres pays à travers le monde. Cette comparaison montre une variation remarquable des concentrations d’activité. La figure 4.3 présente également une comparaison entre les concentrations d’activité  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  pour tous les échantillons d’engrais analysés. Les résultats obtenus montrent une variation remarquable des concentrations

Pays	Concentration d'activité (Bq.kg <sup>-1</sup> )			Référence
	<sup>226</sup> Ra	<sup>232</sup> Th	<sup>40</sup> K	
Algérie (PO1)	143	382	19	[Boumala 2018]
Algérie (PO2)	366	5	26	[Boumala 2018]
Arabie saoudite	64	17	2453	[Alharbi 2013]
Inde	120	65	2624	[Chauhan 2013]
Nigeria (Sokoto)	1039	258	536	[Jibiri 2012]
Nigeria (Togo)	1801	16	871	[Jibiri 2012]
Chine	367	5	45	[Song 2011]
Égypte (El-Mahamid)	567	217	2017	[Abbady 2005]
Égypte (W.ElMashash)	666	330	329	[Abbady 2005]
Brasil	352	246	87	[Saueia 2005]
Égypte (Abu-Tartor)	871	19	176	[Sam 1999]
Soudan (Uro)	4021	8	62	[Sam 1999]
Soudan (Kurun)	432	7	141	[Sam 1999]
Pakistan (Hazara)	440	50	207	[Khan 1998]
Finland	10	10	110	[Khan 1998]
Tunisia	821	29	32	[Olszewska 1995]
Jordanie	1044	2	8	[Olszewska 1995]
Tanzania	5022	717	286	[Makweba 1993]
Étas-Unis (Western)	1000	20	N.F	[Olszewska 1995]
Étas-Unis (Florida)	1600	20	N.F	[Olszewska 1995]
Maroc	1600	20	10	[Guimond 1989]

TAB. 4.4 – Concentrations d'activité moyennes du Ra-226, Th-232 et K-40 dans les minéraux phosphatés de différents pays listés pour comparaison avec la présente étude

Type de fertilisant	Pays	$^{226}\text{Ra}$	$^{232}\text{Th}$	$^{40}\text{K}$	Référence
NPK	Algérie	149	14	3872	[Boumala 2018]
	Arabie saoudite	70	25	4293	[El-Taher 2013]
	Inde	79	28	252	[Chauhan 2013]
	Brésil	420	80	2700	[Saucia 2005]
MAP	Algérie	5	15	52	[Boumala 2018]
	Arabie saoudite	17	42	78	[El-Taher 2013]
	Brésil	17	231	118	[Saucia 2005]
	Pakistan	561	85	138	[Khan 1998]
DAP	Algérie	69	8	50	[Boumala 2018]
	Inde	< 2	13	33	[Shahul 2014]
	Arabie saoudite	9	36	45	[El-Taher 2013]
	Inde	75	65	44	[Chauhan 2013]
	Pakistan	545	56	237	[Khan 1998]
	Bengladesh	99	15	74	[Alam 1997]
SSP	Algérie	132	12	526	[Boumala 2018]
	Inde	396	39	56	[Chauhan 2013]
	Arabie saoudite	55	9	553	[El-Taher 2013]
	Égypte	627	6	8	[Mourad 2009]
	Brésil	871	100	375	[Saucia 2005]
	Pakistan	556	50	221	[Khan 1998]
TSP	Algérie	146	16	534	[Boumala 2018]
	Inde	284	23	72	[Chauhan 2013]
	Arabie saoudite	100	6	546	[El-Taher 2013]
	Égypte	516	7	107	[Mourad 2009]
	Brésil	122	538	147	[Saucia 2005]
	Pakistan	559	84	142	[Khan 1998]

TAB. 4.5 – Concentrations d’activité moyennes du Ra-226, Th-232 et K-40 dans les engrais phosphatés de différents pays listés pour comparaison avec la présente étude

d’activité des radionucléides d’un engrais à l’autre. De plus, ces concentrations ont été comparées avec celles rapportées dans d’autres pays dans le tableau 4.5. Comme le montre ce tableau, les teneurs en radioactivité des engrais varient considérablement d’un pays à l’autre. Cette inhomogénéité peut être essentiellement due aux différentes origines des minéraux phosphatés et au traitement chimique impliqué dans le processus industriel de production de ces engrais. Il est à noter que ces valeurs ne sont pas des valeurs représentatives pour les pays mentionnés, mais pour la région d’où les échantillons ont été collectés.

#### Echantillons de matériaux de construction

Comme il est indiqué ci-dessus, les échantillons de matériaux de construction mesurés peuvent être classés en deux catégories. Une catégorie contenant des produits

Echantillon mesuré	Concentration d'activité (Bq.kg <sup>-1</sup> )		
	<sup>226</sup> Ra	<sup>232</sup> Th	<sup>40</sup> K
Marbre	5 ± 1	1 ± 0,3	17 ± 7
Granite Jaune	62 ± 7	97 ± 16	1340 ± 119
Granite Noir	15 ± 7	42 ± 11	571 ± 55
Platre	8 ± 2	27 ± 4	72 ± 10
Argile	38 ± 9	26 ± 5	256 ± 37
Fer brut	13 ± 5	<	15 ± 2
Ciment gris	27 ± 7	10 ± 2	131 ± 18
Ciment blanc	19 ± 4	2 ± 0,5	112 ± 15
Brique rouge	29 ± 8	25 ± 6	167 ± 27

TAB. 4.6 – Concentrations d'activité de Ra-226, Th-232 et K-40 dans les produits de matériaux de construction

de matières premières (minéraux) prélevés de gisements locaux et une autre catégorie contenant des matériaux de construction finis locaux et importés. Ces échantillons ont fait l'objet d'analyse par spectrométrie gamma. Les concentrations d'activité du <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th et <sup>40</sup>K en Bq.kg<sup>-1</sup>, pour les différents matériaux de construction et matières premières, sont données dans le tableau 4.6.

Il convient de signaler que dans l'ensemble des différents matériaux de construction et matières premières mesurés, on retrouve pratiquement tous les radioéléments naturels primordiaux <sup>238</sup>U, <sup>232</sup>Th et <sup>40</sup>K (tableaux ci-dessus). En examinant les résultats obtenus, on peut tirer les conclusions suivantes : Les concentrations d'activité du <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th et <sup>40</sup>K varient selon la nature de chaque échantillon mesuré dans les intervalles (5 ± 1 – 62 ± 7), (1 ± 0,3 – 97 ± 16) et (15 ± 3 – 1340 ± 119) Bq.kg<sup>-1</sup>, respectivement. Le radionucléide <sup>40</sup>K est celui qui contribue le plus à l'activité spécifique de tous les matériaux de construction mesurés.

Les concentrations d'activité les plus élevées en radionucléides naturels <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th et <sup>40</sup>K ont été obtenues pour un matériau importé qui est le granite jaune (62 ± 7, 97 ± 16 et 1340 ± 119 Bq.kg<sup>-1</sup>), alors que le fer brut (provenant du gisement de l'Ouenza) présente des teneurs en <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th et <sup>40</sup>K nettement plus basses (13 ± 5, < LD et 15 ± 2 Bq.kg<sup>-1</sup>, respectivement).

En comparant les valeurs des concentrations d'activité obtenues avec les limites maximales admissibles de 35, 35 et 400 Bq.kg<sup>-1</sup>, respectivement pour le <sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th et <sup>40</sup>K, on constate que les concentrations du <sup>226</sup>Ra et du <sup>232</sup>Th obtenues ne dépassent pas ces limites, à l'exception de l'échantillon de granite jaune (62 ± 7, 97 ± 16, 1340 ± 119 Bq.kg<sup>-1</sup>). Quant au <sup>40</sup>K, les concentrations d'activité obtenues étaient inférieures au

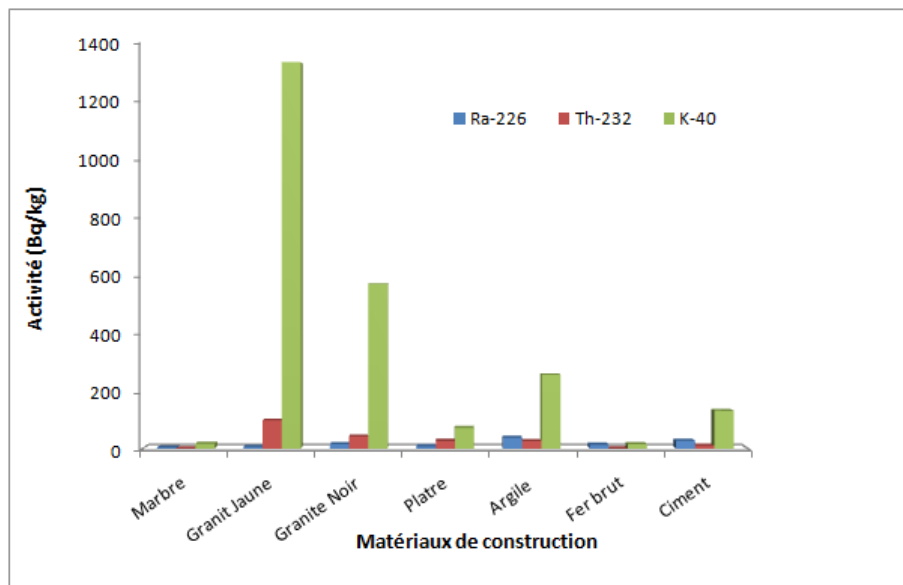


FIG. 4.4 – Comparaison des concentrations d’activités Ra-226, Th-232 et K-40 dans les échantillons de matériaux de construction

niveau d’activité admissible de  $400 \text{ Bq.kg}^{-1}$  pour tous les échantillons, à l’exception des échantillons de granite jaune et noir  $1340 \pm 119$  et  $571 \pm 55 \text{ Bq.kg}^{-1}$ , respectivement. Les concentrations d’activité obtenues sont généralement à faibles niveau mais elles sont très variables selon la nature de la roche. La concentration d’activité en  $^{226}\text{Ra}$  la plus élevée correspond à l’échantillon de granite jaune qui est de l’ordre de  $1340 \pm 119 \text{ Bq.kg}^{-1}$ . Pour le  $^{232}\text{Th}$ , la concentration la plus haute dans le  $\text{Bq.kg}^{-1}$ . Quant au radionuclide primordial  $^{40}\text{K}$ , son activité pour tous les échantillons dépassent la valeur moyenne admissible par l’UNSCEAR qui est  $400 \text{ Bq.kg}^{-1}$ . Les valeurs d’activité du  $^{40}\text{K}$  dans tous les types d’échantillons sous étude sont plus élevées que celles du  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  ainsi que tous les radioéléments identifiés (figure 4.4).

#### 4.4 Évaluation des effets radiologiques

L’un des principaux objectifs de la mesure de la radioactivité dans les échantillons environnementaux est d’estimer les doses d’exposition aux rayonnements et d’évaluer les effets radiologiques sur les êtres humains. Les analyses par spectrométrie gamma permettent d’estimer les risques radiologiques liés à l’irradiation externe. UNSCEAR propose des modèles basés essentiellement sur les concentrations des matériaux en  $^{226}\text{Ra}$  ( $^{238}\text{U}$ ),  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  pour définir certaines grandeurs dosimétriques comme le radium équivalent, les indices de risque interne et externe, le débit de la dose absorbée

et de dose efficace annuelle. Certaines limites à ne pas dépasser sont recommandées. Un indice de risque est un paramètre qui est représenté par une seule valeur qui prend en compte les concentrations d'activités mesurées en  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  dans le matériau [Javied 2011]. Les paramètres radiologiques suivants ont été calculés à partir des activités mesurées  $A_{Ra}$ ,  $A_{Th}$  et  $A_K$  pour les radionucléides spécifiés  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$ , respectivement.

#### 4.4.1 Débit de dose absorbée et dose efficace annuelle

Considérant que les radionucléides naturels  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  sont uniformément répartis dans le sol, le débit de dose dû au rayonnement gamma dans l'air extérieur à 1,0 m au-dessus du sol peut être calculé en unités de  $\text{nGy}\cdot\text{an}^{-1}$ , en utilisant la formule [UNSCEAR 2000] :

$$D = \sum (A_X \cdot C_X) \quad (4.3)$$

où  $A_X$  ( $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ) est l'activité moyenne de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  et  $C_X$  ( $\text{nGy}\cdot\text{an}^{-1}$  par  $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ) leurs facteurs de conversion de dose correspondants. Dans le présent travail, les valeurs de  $C_X$  utilisées dans tous les calculs de débit de dose sont 0.462, 0.604 et 0,042 ( $\text{nGy}\cdot\text{an}^{-1}$ ) pour  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$ , respectivement [Al-Trabulsy 2011]. Par conséquent,  $D$  peut être calculé comme suit :

$$D = 0,462 A_{Ra} + 0,604 A_{Th} + 0,042 A_K \quad (4.4)$$

La valeur acceptable pour le débit de dose absorbée externe doit être inférieure à 59  $\text{nGy}\cdot\text{an}^{-1}$ , selon [UNSCEAR 2008]. Le débit de dose absorbé ne donne pas directement le risque radiologique auquel un individu est exposé [Jibiri 2007]. Il peut être considéré en termes de dose efficace annuelle équivalent du rayonnement gamma terrestre en plein air, qui est converti à partir de la dose absorbée en prenant en compte le facteur de conversion de la dose absorbée dans l'air à la dose efficace et le facteur d'occupation extérieure. Le débit de dose efficace annuel ( $AEDR$ , en  $\text{mSv}\cdot\text{an}^{-1}$ ) a été estimé à l'aide de la formule suivante :

$$AED = D \times T \times F \quad (4.5)$$

où  $D$  ( $\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}$ ) est le débit de dose calculé donné dans l'équation 4.4,  $T$  est le temps d'occupation extérieur [ $0,2 \times 24$  (heures)  $\times 365,25$  (jours)] et  $F$  est le facteur de conversion [ $0,7 \times 10^{-6} \text{ Sv}\cdot\text{Gy}^{-1}$ ]. Ainsi, l'expression de  $AED$  devient :

$$AED = D (\text{nG}\cdot\text{h}^{-1}) \times 8760 (\text{h}\cdot\text{y}^{-1}) \times 0,2 \times 0,7 (\text{Sv}\cdot\text{Gy}^{-1}) \times 10^{-6} \quad (4.6)$$

Les valeurs de  $AED$  ne dépassent pas la limite annuelle de dose efficace fixée à 1  $\text{mSv}\cdot\text{an}^{-1}$  pour le grand public [UNSCEAR 2008].



#### 4.4.2 Excès de risque de cancer au cours d'une durée de vie

Ce paramètre donne la probabilité de développer un cancer dans une population d'individus au cours d'une vie à un niveau donné d'exposition au rayonnement. Il est calculé en supposant une relation linéaire entre la dose et les effets stochastiques. Le facteur ELCR peut être estimé en utilisant l'équation suivante [Taskin 2009] :

$$ELCR = AEDE \times DL \times RF \quad (4.7)$$

où  $AEDE$  est l'équivalent de dose efficace annuelle,  $DL$  est la durée de vie moyenne (supposée être 70 ans) et  $RF$  est le facteur de risque mortel de cancer par Sievert, qui est stochastiquement déterminé par la CIPR (1990) à 0,05 pour le publique.

#### 4.4.3 Radium équivalent

Cet indice radiologique est utilisé pour comparer les niveaux d'activité de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  dans les matériaux. Il est basé sur l'idée que 10 Bq.kg<sup>-1</sup> de  $^{226}\text{Ra}$ , 7 Bq.kg<sup>-1</sup> de  $^{232}\text{Th}$  et 130 Bq.kg<sup>-1</sup> de  $^{40}\text{K}$  produisent la même dose efficace de rayonnement gamma. La notion de  $Ra_{eq}$  est également employé pour évaluer les risques radiologiques dus à la radioactivité dans les matériaux de l'environnement. Il est calculé à partir de la relation donnée par Beretka et Mathew [Beretka 1985] :

$$Ra_{eq} = A_{Ra} + (7/10) A_{Th} + (10/130) A_K \quad (4.8)$$

Le maximum autorisé de l'activité équivalente au radium est signalée à être inférieur à 370 Bq.kg<sup>-1</sup>, afin de limiter la dose efficace à 1 mSv.an<sup>-1</sup> pour le grand publique [UNSCEAR 1982].

#### 4.4.4 Indices de risque externes et internes

Comme mentionné dans, en ce qui concerne la population, la limite supérieure des doses des différentes radiations dans les matériaux ne doit pas dépasser 1 mSv.an<sup>-1</sup>. Afin de limiter la dose de radiation à cette valeur, différents modèles basés sur des critères différents ont été proposés. Le modèle proposé par Kriger [Krieger 1981] est basé sur un indice appelé indice de risque externe  $H_{ex}$ , qui peut être quantifié en utilisant la relation suivante [Oladele 2009] :

$$H_{ex} = A_{Ra}/370 + A_{Th}/259 + A_K/4810 \quad (4.9)$$

Le risque d'exposition aux rayonnements est négligeable lorsque la valeur maximale de l'indice de risque externe est inférieure à l'unité ( $H_{ex} \leq 1$ ), ce qui correspond à une activité maximum du radium- equivalent de 370 Bq.kg<sup>-1</sup>.

La décroissance du  $^{226}\text{Ra}$  aboutit au  $^{222}\text{Rn}$  et ses descendants avec différentes proportions en tenant compte de l'équilibre radioactif. En plus de l'exposition externe aux rayonnements, l'inhalation du gaz  $^{222}\text{Rn}$  et de ses produits de désintégration à courte durée de vie, tels que le  $^{214}\text{Po}$  et le  $^{218}\text{Po}$  ( $\alpha$ -émission d'énergie élevée) peut être dangereuse pour les organes respiratoires internes. L'exposition interne au radon et ses descendances est défini par l'indice de risque interne  $H_{in}$ , qui peut être quantifié par la relation ci-après [Shahul 2014] :

$$H_{in} = A_{Ra}/185 + A_{Th}/259 + A_K/4810 \quad (4.10)$$

La valeur limite de l'indice de risque interne doit être inférieure à l'unité ( $H_{in} \leq 1$ ).

#### 4.4.5 Indice gamma

Un autre indice de risque radiologique dit indice représentatif de niveau (indice gamma), noté  $I_{\gamma r}$ , est utilisé pour examiner le niveau de risque des rayonnements gamma. C'est aussi un moyen pour contrôler l'excès de dose associé aux radionucléides naturels  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  dans les matériaux. Il peut être calculé selon la formule [Oladele 2009] :

$$I_{\gamma r} = A_{Ra}/150 + A_{Th}/100 + A_K/1500 \quad (4.11)$$

Les valeurs de  $I_{\gamma r} \leq 1$  correspondent à une dose efficace annuelle inférieure ou égale à 1 mSv.an<sup>-1</sup>, tandis que  $I_{\gamma r} \leq 0,5$  correspond à une dose efficace annuelle inférieure ou égale à 0,3 mSv.an<sup>-1</sup> [Turham 2008].

#### 4.4.6 Doses de rayonnement $\gamma$ et paramètres radiologiques

##### Echantillons phosphatés

Les valeurs de doses et des paramètres radiologiques pour les deux minéraux de phosphate ainsi que les engrais phosphatés ont été calculées après avoir déterminé les activités des différents radionucléides (tableau 4.7).

Les valeurs des débits de dose absorbée ( $D$ ) calculées en utilisant l'équation (4.4) pour les deux minéraux de phosphate, sont très élevés : pour PO1, la valeur de  $D$  est de l'ordre de 6 fois la limite admissible fixée à 55 nGy.h<sup>-1</sup> [UNSCEAR 2008], et la valeur correspondante pour PO2 est environ trois fois la valeur limite. En se basant sur la radioactivité des engrais phosphatés, les débits de dose absorbés calculés pour les engrais phosphatés varient entre 14 et 235 nGy.h<sup>-1</sup>, avec une valeur moyenne de

Ech	$D(\text{nGy.h}^{-1})$	$AEDR(\text{mSv.an}^{-1})$	ELCR	$Ra_{eq}(\text{Bq.kg}^{-1})$	$H_{ex}$	$H_{in}$	$I_{\gamma r}$
PO1	297	0,36	$1,29 \times 10^{-3}$	690	1,86	2,25	4,78
PO2	173	0,21	$0,75 \times 10^{-3}$	375	1,86	2,25	2,50
NPK	235	0,28	$1,00 \times 10^{-3}$	460	1,24	1,64	3,65
NPKs	136	0,16	$0,57 \times 10^{-3}$	252	0,68	0,70	2,16
MAP	14	0,01	$0,036 \times 10^{-3}$	30	0,08	0,09	0,21
DAP	38	0,04	$0,14 \times 10^{-3}$	83	0,22	0,41	0,56
SSP	90	0,11	$0,39 \times 10^{-3}$	190	0,51	0,86	1,35
TSP	104	0,12	$0,34 \times 10^{-3}$	220	0,59	1,01	1,55

TAB. 4.7 – Dose de rayonnement gamma et paramètres radiologiques des échantillons phosphatés mesurés

$102 \text{ nGy.h}^{-1}$ . Il est révélé que les valeurs de  $D$  dépassent la valeur admissible pour les engrais NPK, NPK, SSP et TSP. L'engrais NPK présente la valeur maximale qui est de l'ordre de quatre fois la valeur limite. Cependant, les engrais MAP et DAP présentent des valeurs acceptables qui ne dépassent pas la limite recommandée de  $55 \text{ nGy.h}^{-1}$ .

En prenant un facteur d'occupation extérieur de 0,2 et un facteur de conversion de  $0,7 \text{ Sv.Gy}^{-1}$ , les doses efficaces annuelles de minerais de phosphate et d'engrais ont été estimées à partir de l'équation (4.6). Les résultats pour le calcul des valeurs  $AEDR$  sont présentés dans le tableau 4.7. Pour PO1 et PO2, ces valeurs sont de 0,36 et 0,21  $\text{mSv.an}^{-1}$ , respectivement, ce qui représente environ 36 et 21% de la limite recommandé de  $1,0 \text{ mSv.an}^{-1}$  [UNSCEAR 2008] comme dose annuelle maximale pour le grand public. Les résultats montrent que les valeurs  $AEDR$  des échantillons d'engrais varient entre 0,01 et 0,28  $\text{mSv.an}^{-1}$  avec une valeur moyenne de  $0,12 \text{ mSv.an}^{-1}$ , c'est-à-dire environ 12 % de la limite de dose annuelle.  $^{40}\text{K}$  est le principal contributeur aux doses d'engrais NPK, tandis que  $^{226}\text{Ra}$  est le principal contributeur à  $D$  dans les engrais DAP, SSP et TSP. La somme de la contribution relative de  $^{226}\text{Ra}$  et  $^{40}\text{K}$  au  $AED$  varie de 32 à 98 % dans tous les engrais analysés, comme le montre la figure 4.5.

Les valeurs du paramètre ELCR ont été calculés à partir de l'équation (4.7) pour le cas d'exposition externe due aux minerais de phosphate et d'engrais. Ces valeurs figurent dans la troisième colonne du tableau 4.7. Comme indiqué dans ce tableau, les valeurs vont de  $0,75.10^{-3}$  à  $1,29.10^{-3}$  et de  $0,036.10^{-3}$  à  $1,00.10^{-3}$  pour les minerais de phosphate et les engrais phosphatés, respectivement. La valeur moyenne du facteur ELCR pour les minerais de phosphate était ( $1,02.10^{-3}$ ) relativement élevée, donc elle est de l'ordre 3,5 fois la moyenne mondiale de  $0,29.10^{-3}$  [UNSCEAR 2008]. La valeur correspondante pour les engrais ( $0,42.10^{-3}$ ) était légèrement supérieure à la moyenne mondiale (figure 4.6).

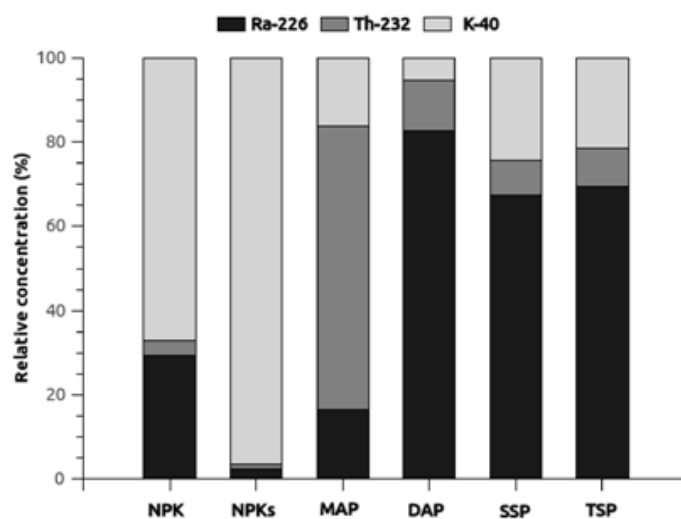


FIG. 4.5 – Concentration relative des radionucléides Ra-226, Th-232 et K-40 à AED dans les engrais phosphatés

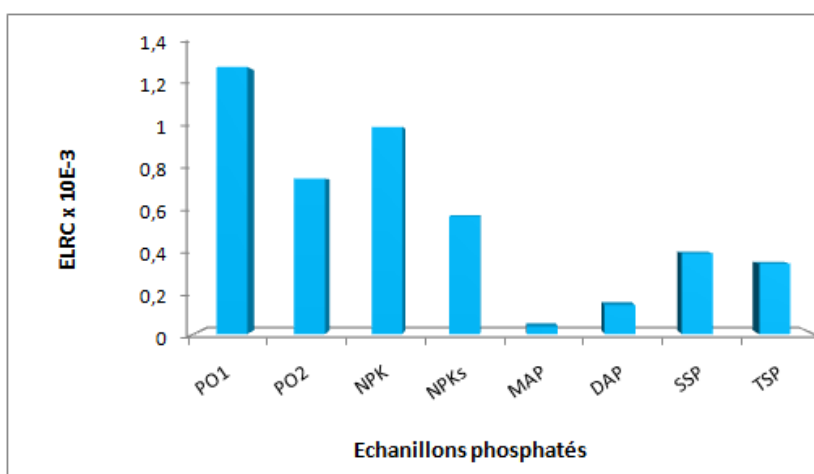


FIG. 4.6 – Variation des valeurs de ELCR pour l'ensemble des échantillons phosphatés

Cela signifie que le facteur de cancer à vie est un risque supplémentaire que quelqu'un puisse avoir un cancer si cette personne est exposée à des substances cancérigènes pendant une longue période. En outre, il encourage le contrôle de l'utilisation de ces matériaux par différents moyens, tels que la sensibilisation à l'environnement sur le rôle des radionucléides naturels et ses risques radiologiques pour les mineurs, les fabricants, les agriculteurs et le publique.

Puisque les distributions du  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  dans les échantillons étudiés n'étaient pas uniformes, l'activité de l'équivalent radium ( $Ra_{eq}$ ) a été calculée en utilisant l'équation 4.8 pour comparer les activités spécifiques obtenues dans ces échantillons. Les résultats de  $Ra_{eq}$  sont présentés dans la quatrième colonne du tableau 4.7. Les valeurs de  $Ra_{eq}$  obtenues pour les deux minerais PO1 et PO2 sont 690 et 375  $\text{Bq.kg}^{-1}$ , respectivement. La valeur obtenue pour le PO1 est de l'ordre de deux fois la valeur limite de 370  $\text{Bq.kg}^{-1}$  recommandée, tandis que celle obtenue pour PO2 est du même ordre que la valeur limite. Les valeurs correspondantes pour tous les échantillons d'engrais phosphatés varient entre 30 et 690  $\text{Bq.kg}^{-1}$ , avec une valeur moyenne de 206  $\text{Bq.kg}^{-1}$ . Ces valeurs sont nettement inférieures au seuil recommandé, à l'exception de l'échantillon NPK (460  $\text{Bq.kg}^{-1}$ ).

Les valeurs moyennes calculées de  $H_{ex}$  (équation 4.9) et  $H_{in}$  (équation 4.10) sont également présentées dans le tableau 4.7. Les valeurs de  $H_{ex}$  pour PO1 et PO2 étaient respectivement 1.86 et 1.0, il est donc clair que la valeur de  $H_{ex}$  pour PO1 dépasse l'unité. Concernant les échantillons d'engrais,  $H_{ex}$  varie de 0,08 à 1,24 avec une valeur moyenne de 0,55, ces valeurs  $H_{ex}$  pour les engrais sont inférieures à l'unité, sauf pour l'engrais NPK (1,24). Les valeurs de  $H_{in}$  pour PO1 (2.25) et PO2 (2.0) dépassent la limite d'unité. Les valeurs de  $H_{in}$  varient de 0,095 à 1,64 pour les échantillons d'engrais ayant une valeur moyenne de 0,79, et la limite de 1,0 pour  $H_{in}$  n'a été dépassée que pour l'engrais NPK (1,64). Les valeurs calculées de  $I_{\gamma r}$  (équation 4.11) sont présentées dans la dernière colonne du tableau 4. Les valeurs obtenues pour PO1 (4,78) et PO2 (2,50) dépassent la limite de l'unité. De plus, pour les engrais mesurés, les valeurs correspondantes varient entre 0,56 et 3,65, avec une valeur moyenne de 1,58. Toutes les valeurs obtenues dépassent la limite de 1,0, à l'exception pour les engrais MAP et DAP.

D'après la figure 4.7, la contribution relative du  $^{226}\text{Ra}$  et du  $^{40}\text{K}$  au paramètre  $Ra_{eq}$  varie de 28% à 95% dans tous les engrais analysés. Le  $^{226}\text{Ra}$  représente la contribution principale au  $Ra_{eq}$  pour les engrais DAP, SSP et TSP, tandis que le  $^{40}\text{K}$  contribue principalement au  $Ra_{eq}$  pour l'engrais NPK. Le  $^{232}\text{Th}$  a la contribution la plus faible au  $Ra_{eq}$  dans tous les engrais à l'exception du MAP.

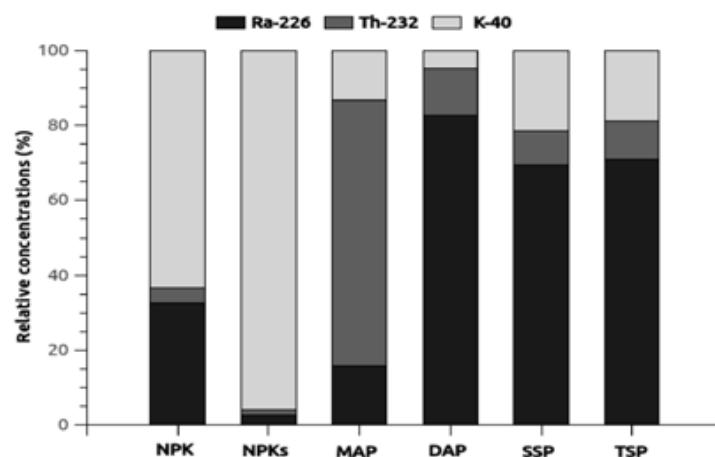


FIG. 4.7 – Concentration relative des radionucléides Ra-226, Th-232 et K-40 à  $Ra_{eq}$  dans les engrais phosphatés

Pays	D( $nGy \cdot h^{-1}$ )	AED( $nGy \cdot an^{-1}$ )	$Ra_{eq}$ ( $Bq \cdot kg^{-1}$ )	Référence
Algérie (PO1)	297	0,36	690	[Boumala 2018]
Algérie (PO2)	173	0,21	375	[Boumala 2018]
Brésil	-	-	710	[Saucia 2005]
Égypte (El-Mahamid)	410	0,41	921	[Abbady 2005]
Égypte (W.ElMashash)	527	0,53	1182	[Abbady 2005]
Égypte (Abu-Tartor)	-	-	321	[Khater 2001]
Soudan (Uro)	1862	1,8	4147	[Sam 1999]
Soudan (Kurun)	211	0,18	141	[Sam 1999]
Pakistan (Hazara)	242	0,234	527	[Khan 1998]
Finland	15	0,016	36	[Khan 1998]
Tunisie	398	0,38	865	[Olszewska 1995]
Jordanie	484	0,45	1047	[Olszewska 1995]
Tanzania	2765	2,60	6069	[Makweba 1993]
États-Unis (Western)	474	0,45	1029	[Guimond 1989]
États-Unis (Florida)	751	0,71	1629	[Guimond 1989]
Russie (Kola)	62	0,07	147	[Guimond 1989]
Maroc	752	0,71	1629	[Guimond 1989]

TAB. 4.8 – Comparaison des concentrations d'activité du Ra-226, Th-232 et K-40 dans des minéraux phosphatés de différents pays du monde

Echantillon	$D(\text{nGy.h}^{-1})$	$AEDR(\text{mSv.an}^{-1})$	ELCR	$Ra_{eq}(\text{Bq.kg}^{-1})$	$H_{ex}$	$H_{in}$	$I_{\gamma r}$
Marbre	2,89	0,004	$0,01 \times 10^{-3}$	5,40	0,01	0,02	0,04
Granite jaune	142,80	0,17	$0,61 \times 10^{-3}$	222,97	0,81	0,98	2,27
Granite noir	56,10	0,06	$0,24 \times 10^{-3}$	84,37	0,32	0,36	0,90
Platre	22,63	0,02	$0,09 \times 10^{-3}$	31,50	0,13	0,16	0,36
Argile	43,93	0,05	$0,18 \times 10^{-3}$	74,12	0,25	0,35	0,68
Fer brut	6,62	0,008	$0,02 \times 10^{-3}$	14,04	0,03	0,07	0,09
Ciment	23,67	0,02	$0,10 \times 10^{-3}$	42,82	0,13	0,20	0,36

TAB. 4.9 – Dose de rayonnement gamma et paramètres radiologiques des échantillons de matériaux de construction

Le tableau 4.8 compare les résultats rapportés du débit de dose  $D$ , de la dose efficace annuelle  $AED$  et des activités équivalentes au radium  $Ra_{eq}$  obtenues dans d'autres pays avec ceux déterminés dans cette étude. Les grandeurs  $D$ ,  $AED$  et  $Ra_{eq}$  évaluées dans ce travail varient dans les valeurs moyennes rapportées d'autres pays.

#### Echantillons de matériaux de construction

Les concentrations d'activité des principaux radionucléides primordiaux  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  et  $^{40}\text{K}$  identifiés dans l'ensemble des échantillons de matériaux de construction étaient relativement faibles. À partir de ces activités, les valeurs des doses et des paramètres radiologiques associés à ces échantillons sont estimés et illustrés dans le tableau 4.9.

Le tableau 4.9 indique les valeurs de débit de dose absorbée pour tous les matériaux de construction mesurés. Ces valeurs varient de 2,89 à 142,8 nGy.h<sup>-1</sup>. Nous pouvons confirmer que toutes ces valeurs sont dans la norme de réglementation ( $< 55$  nGy.h<sup>-1</sup>), à l'exception du granite jaune pour lequel la valeur obtenue est de l'ordre d'environ 2,5 fois la limite recommandée (figure 4.8).

En examinant les valeurs des doses efficaces annuelles, on peut également confirmer que tous les produits de construction étudiés sont dans la norme ( $< 1$  mSv.an<sup>-1</sup>). Toutes les valeurs de doses annuelles pour les produits sains sont comprises entre 0,004 et 0,17 mSv.an<sup>-1</sup>.

Les valeurs du paramètre ELCR ont été calculés pour le cas d'exposition externe due aux différents matériaux de construction. Ces valeurs figurent dans la troisième colonne du tableau 4.9. Ces valeurs varient dans l'ensemble de  $0,01 \cdot 10^{-3}$  à  $0,61 \cdot 10^{-3}$ .

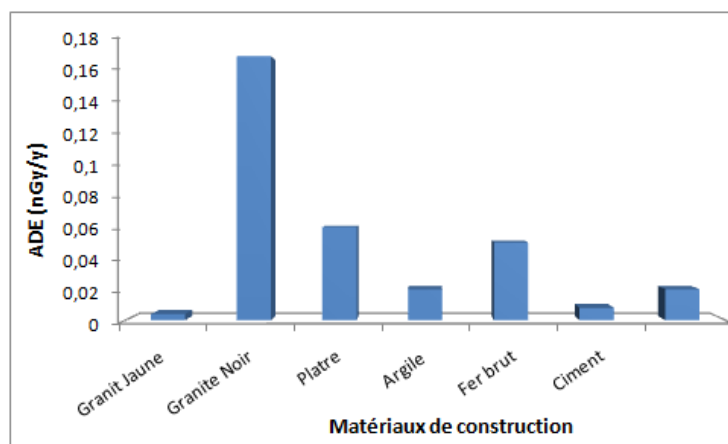


FIG. 4.8 – Variation des valeurs de AED pour l'ensemble des matériaux de construction

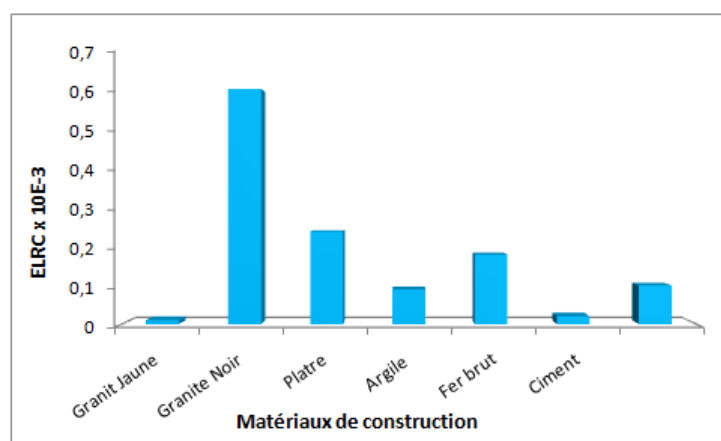


FIG. 4.9 – Variation des valeurs de ELRC pour l'ensemble des matériaux de construction



Toutes ces valeurs sont donc inférieures à la moyenne mondiale de  $0,29.10^{-3}$  (figure 4.9). Concernant les paramètres radiologiques, l'activité de l'équivalent radium, les indices de risque externe et interne et l'indice gamma ont été calculés pour tous les échantillons de produits de construction. D'après les résultats du tableau 4.9, on peut constater que les valeurs caractéristiques de l'ensemble de ces paramètres sont dans les normes de réglementation sans exception. Les paramètres  $H_{ex}$ ,  $H_{in}$  et  $I_{\gamma r}$  sont inférieurs à l'unité. Pour le  $Ra_{eq}$ , les valeurs correspondantes varient de 5,40 à 222,97 Bq.kg<sup>-1</sup>.