

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

**Ministère de l'Enseignement Supérieur et
de la Recherche Scientifique**

**INSTITUT DES SCIENCES DE LA MER ET DE L'AMENAGEMENT
DU LITTORAL (I.S.M.A.L)**

M é m o i r e

**Présenté à l'ISMAL pour l'obtention du diplôme
d'Ingénieur d'Etat en Aménagement du Littoral
et Protection de l'Environnement**

Option: Pollution Marine

Par KECIR Mohand Said et KHABER Aomar

Thème

**ETUDE DE LA REPARTITION RADIALE ET VERTICALE DE LA
RADIOACTIVITE DANS LES SEDIMENTS DE LA BAIE DE BOUISMAIL
ET ESTIMATION DE LA VITESSE DE SEDIMENTATION**

Soutenu publiquement le 1^{er} juillet 1998 devant le jury composé de:

Mr. R. SEMROUD (Maître de conférence)	Président.
Mr. M. BOULAHIDID (Maître de conférence)	Examineur.
Mr. M. ROUIBEH (Maître assistant)	Examineur.
Mr. A. NOUREDDINE (Chargé de recherche au CRS)	Rapporteur.
Mr. A. GHEDDOU (Attaché de recherche au CRS)	Rapporteur.

Année universitaire 1996/1997

SOMMAIRE

Page

Introduction	1
---------------------------	----------

Chapitre I : Généralités sur la radioactivité

I.1 Rappels et notions	3
I.1.1 Historique	3
I.1.2 Définitions	3
I.1.3 Modes d'émission	4
I.1.3.1 Désintégration alpha (α)	4
I.1.3.2 Désintégration bêta (β)	4
I.1.3.3 Emission gamma (γ)	4
I.2 Radioactivité naturelle et artificielle	5
I.2.1 La radioactivité naturelle	5
I.2.1.1 Radionucléides d'origine cosmique	5
I.2.1.2 Radionucléides primordiaux	5
I.2.1.3 Séries de désintégration de l'U et de Th	6
I.2.2 Classification des radionucléides artificiels	8
I.2.2.1 Sources des radionucléides artificiels	9
I.2.2.2.1 Tests d'armes nucléaire	9
I.2.2.2.2 Rejets de l'industrie nucléaire	9
I.2.2.2.3 Les apports accidentel	9
I.3 Transfert et distribution des radionucléides dans l'environnement	11
I.3.1 Répartition des radionucléides dans l'écorce terrestre	13
I.3.2 Distribution verticale des radionucléides dans l'atmosphère	13
I.3.2.1 Radionucléides naturels	13
I.3.2.2 radionucléides anthropiques	14

Chapitre II : Les radionucléides dans le milieu marin

II.1 Dispersion et sédimentation dans la masse d'eau	19
II.2 Comportement et devenir dans les sédiments	22
II.2.1 Sorption des radionucléides sur les sédiments	22
II.2.1.1 Granulométrie	23
II.2.1.2 Teneur en matière organique	24
II.2.1.3 Teneur en carbonates	24
II.2.2 Devenir des radionucléides dans la colonne de sédiment	24
II.2.2.1 Diffusion moléculaire	25
II.2.2.2 Bioturbation	25

Chapitre III : Interaction des rayons gamma avec la matière et détecteurs utilisés

III.1 Processus d'interaction des rayons γ avec la matière :	27
III.1.1 Absorption photoélectrique :	27
III.1.3 Production de paires :	27
III.2 Détection des rayons γ :	28
III.2.1 Détecteurs utilisés :	28
III.2.1.1 Détecteurs à gaz :	28
III.2.1.2 Détecteurs à scintillation :	30
III.2.1.3 Détecteurs à semi-conducteur :	30
III.2.1.4 Comparaison:	30

Chapitre IV : Présentation du site d'étude

IV.1 Réseau Hydrographique :	31
IV. 2. Facteurs Hydrodynamiques :	31
IV.2.1 Vents :	31
IV.2.2 Houles.....	33
IV.2.3 Courants.....	33
IV.3 Sédimentologie	33

Chapitre V : Campagne d'échantillonnage

V.1 Prélèvement des échantillons	36
V.2 Traitement des échantillons à bord.....	36

Chapitre VI : Conditionnement et analyse des échantillons

VI. 1. Conditionnement des échantillons	40
VI. 2. Analyse des échantillons	40
VI.3 Description de la chaîne de détection.....	40
VI.3.1. Structure et rôle du blindage :	41
VI.4 Calibration en énergie.....	43
VI. 5 Calibration en efficacité.....	44
VI.6 Comptage du bruit de fond.....	47
VI.7 Analyse du spectre d'énergie	49
VI. 8 Calcul des concentrations d'activité	49

VI.8.1. Détermination du ^{226}Ra :	50
VI.8.2. Détermination du ^{228}Ra	50
VI.8.3. Détermination du ^{228}Th	51
VI.8.4. Détermination de la MDA	51

Chapitre VII : Résultats et discussion

VII. 1. Détermination du ^{226}Ra – comparaison des deux méthodes.....	52
VII. 2. Niveaux de la radioactivité dans les sédiments.....	54
VII.2. Répartition radiale des radionucléides	55
VII.2.1. Radioéléments naturels:.....	55
VII. 2.1.1 Radium 228- Thorium 228.....	55
VII. 2.1.2 Radium 226 (^{226}Ra) :.....	58
VII. 2.1.3. Potassium 40 (^{40}K) :.....	59
VII. 2.1.4 Uranium 235 (^{235}U) :.....	60
VII. 2.1.5 Plomb 210 (^{210}Pb) :.....	61
VII.2.2. Césium 137 (^{137}Cs).....	62
VII.2.3. Comparaison des résultats de quelques radionucléides :	63
VII. 3. Distribution verticale des radionucléides.....	64
VII. 3. 1. Distribution verticale du ^{40}K :.....	64
VII. 3. 2. Thorium 228 - Radium 228	65
VII. 3. 3. Radium 226 (^{226}Ra) :.....	65
VII. 3. 4. Distribution verticale du Plomb 210 (^{210}Pb):	66
VII. 3. 5. Distribution verticale du ^{137}Cs	70
Conclusion	74
Bibliographie	76
Annexe	80

LISTE DES FIGURES

	Page
Figure I.1: Séries naturelles de désintégration radioactive.....	7
Figure I.2: Voies de transfert des radionucléides entre les différents compartiments de l'environnement.....	12
Figure I.3: Evolution des retombées atmosphériques du ¹³⁷ Cs dans les zones côtières Italiennes.....	15
Figure I.4: Evolution des retombées de Chernobyl du ¹³⁷ Cs dans les zones côtières Italiennes	15
Figure II.1: Dispersion des radionucléides dans le milieu marin	21
Figure II.2: Représentation schématique du phénomène de la bioturbation	26
Figure III.1: Représentation schématique de l'effet photoélectrique	29
Figure III.2: Représentation schématique de l'effet Compton	29
Figure III.3: Représentation schématique de l'effet production de paires	29
Figure IV.1: Situation géographique de la baie de Bou-Ismaïl	32
Figure IV.2: Nature et répartition des sédiments dans la baie de Bou-Ismaïl	35
Figure V.1: Localisation des stations de prélèvement.....	37
Figure V.2: Schémas des équipements utilisés lors de la campagne	38
Figure VI.1: Schéma synoptique de la chaîne de détection	42
Figure VI.2: Droite de calibration en énergie de la chaîne de spectrométrie gamma	43
Figure VI.3: Schéma de la géométrie de comptage 500 cc Marinelli	44
Figure VI.4: Courbe de calibration en efficacité de la chaîne de spectrométrie gamma pour la géométrie utilisée	46
Figure VI.5: Courbe de calibration d'erreur sur l'efficacité de la chaîne de spectrométrie gamma pour la géométrie utilisée	46
Figure VI.6: Comparaison du spectre d'un échantillon au spectre du bruit de fond	48

Figure VII.1.a: Variation radiale du ^{228}Ra et ^{228}Th	58
Figure VII.1.b: Répartition radiale du ^{226}Ra	59
Figure VII.1.c: Répartition radiale du ^{40}K	60
Figure VII.1.d: Répartition radiale l' ^{235}U	61
Figure VII.1.e : Répartition radiale du ^{210}Pb	62
Figure VII.2: Répartition horizontale du ^{137}Cs	63
Figure VII.3: Distribution verticale du ^{40}K	64
Figure VII.4: Distribution verticale du ^{228}Th - ^{228}Ra	65
Figure VII.5: Distribution verticale du ^{226}Ra	66
Figure VII.6: Distribution verticale du plomb total.....	67
Figure VII.7: Distribution verticale du ^{210}Pb en excès.....	69
Figure VII.8: Distribution verticale du ^{137}Cs	70

Liste des Tableaux

	Page
Tableau I.1: Radionucléides cosmiques	6
Tableau I.2: Radionucléides primordiaux	6
Tableau I.3: Radionucléides issus de tests d'armes nucléaires	10
Tableau I.4: Apports estimatifs des radionucléides de l'accident de Chernobyl	10
Tableau II.1: Concentrations moyennes d'activités de radionucléides naturels dans le milieu marin	17
Tableau II.2: Niveaux du ^{137}Cs dans les eaux et les sédiments de surface de la mer Méditerranée dans l'avant et l'après Chernobyl	18
Tableau II.3: Capacité de fixation de limons en suspension à l'égard des radionucléides rejetés dans la baie de Banbay	22
Tableau II.4: Influence de la taille des particules sur l'accumulation de divers radionucléides par les sédiments.....	23
Tableau IV.1: Fréquence des vents (%) selon les directions dominantes dans la baie de Bou-Ismaïl	33
Tableau V.1: Les différentes opérations effectuées lors de la campagne	39
Tableau VI.1: Calibration en énergie du détecteur Ge-HP	43
Tableau VI.2: Valeurs de l'efficacité obtenues pour les différentes énergies de ^{152}Eu	45
Tableau VII.1: Concentrations du ^{226}Ra dans la carotte sédimentaire.....	53
Tableau VII.2: Concentrations du ^{226}Ra dans les sédiments de surface.....	53
Tableau VII.3: Concentration des radionucléides naturels et du ^{137}Cs dans les sédiments de surface.....	56
Tableau VII.4: Concentration des radionucléides naturels et du ^{137}Cs dans la carotte sédimentaire.....	57

La radioactivité naturelle et artificielle présente dans les différents compartiments de l'environnement sont introduite dans le milieu marin par plusieurs voies.

En plus de la radioactivité naturelle, les principales sources de contamination de ce milieu, sont dues aux retombées de tests d'armes nucléaires, aux apports d'accidents nucléaires, aux rejets de l'industrie nucléaire ainsi qu'aux dépôts de déchets radioactifs.

Cette radioactivité, une fois introduite dans le milieu marin, est diluée, dispersée et fixée par plusieurs matrices, notamment les organismes marins, l'eau et les sédiments.

Elle peut être sous l'influence de plusieurs phénomènes naturels, notamment le cumul de la radioactivité dans les sédiments et la resuspension.

Le présent travail qui rentre dans le cadre du projet de surveillance radiologique de l'environnement le long du littoral algérien, se dirige par le laboratoire d'études d'impacts radiologiques du centre de Radioprotection et de Sécurité, à pour but l'évaluation de la radioactivité naturelle et artificielle dans les sédiments de surface et de profondeur.

Il permet aussi d'étudier la répartition des radionucléides présents dans les sédiments superficiels, le long d'une radiale d'une part et la distribution verticale dans une carotte sédimentaire d'autre part, à travers le comportement de certains radioéléments naturels et le ^{137}Cs .

Par ailleurs, l'exploitation des résultats de l'analyse de la carotte sédimentaire, du ^{210}Pb en excès et du ^{137}Cs , nous permettra d'estimer le taux de sédimentation dans notre région d'étude d'une part, et l'inventaire du ^{137}Cs dans les sédiments de fond d'autre part. Cet inventaire nous permettra aussi d'évaluer le pourcentage des retombées issues de tests d'arme nucléaire dans l'atmosphère, qui ont atteint les sédiments du fond marin.

A cet effet une carotte de sédiment et quatre échantillons de sédiment de surface ont été prélevés à des profondeurs respectives, 350m et comprises entre 20 et 500 m.

Le prélèvement a eu lieu lors de la campagne d'échantillonnage effectuée à bord du navire océanographique M-S Ben Yahia en septembre 1997, dans la baie de Bouismail.

Le choix des stations de prélèvement a été effectué sur la base de la connaissance, au préalable, de la répartition des sédiments dans la baie de Bouismail.

Tous les échantillons, aussitôt prélevés, ont subi un préconditionnement à bord, et ultérieurement un conditionnement et une analyse au laboratoire de l'Environnement du CRS d'Alger.

Ce mémoire comporte sept chapitres, dont les trois premiers représentent la partie théorique qui permettra une meilleure compréhension de la radioactivité dans le milieu marin. Par contre, les quatre autres chapitres font l'objet de la partie pratique qui se termine par une tentative d'interprétation.

dsai

Chapitre I :
Généralités sur la radioactivité

I.1 Rappels et notions :

I.1.1 Historique :

Etudiant les phénomènes de luminescence produits par les rayons cathodiques, le physicien Français Henri BECQUEREL découvre en 1896 que les minerais de l'uranium sont capables d'impressionner les plaques photographiques. Ils émettent donc des rayons analogues à la lumière et aux rayons "X" mais sont de nature inconnue. Il constata par la suite que l'émission "des rayons uraniques" était une propriété atomique spontanée de l'uranium, que celui-ci soit sous la forme de métal pur ou composé, qu'il ait été ou non préalablement exposé à la lumière.

Deux ans plus tard, Pierre et Marie Curie mettent en évidence dans les minerais qu'ils utilisent, un autre métal bien plus actif que l'uranium et qu'ils appellent le radium. Ils nomment radioactivité l'ensemble des phénomènes produits par le radium, l'uranium et bien d'autres corps.

I.1.2 Définitions :

Chaque atome se caractérise par son nombre de masse A et sa charge électrique Z où A représente la somme des nucléons, protons et neutrons, du noyau.

Les radionucléides se caractérisent par l'instabilité de leurs noyaux due à l'excès des nucléons. Pour atteindre la stabilité, le noyau subit un réarrangement des nucléons, par l'émission de rayonnements particuliers ou électromagnétiques. Ce phénomène est appelé désintégration radioactive qui est un processus nucléaire spontané.

Quand la radiation est émise, le radionucléide change en un autre élément qui peut être, lui aussi, radioactif.

La désintégration radioactive obéit dans l'ensemble à la loi de décroissance suivante (Ouahes, 1988) :

$$N = N_0 \exp(-\lambda.t) \quad (I.1)$$

où N_0 : nombre d'atomes existant à $t = 0$;

N : nombre d'atomes restants, à l'instant t .

Tout radionucléide est caractérisé par une constante radioactive λ , définie comme étant la probabilité de désintégration par unité de temps, et par sa période T, définie comme le temps au bout duquel, le nombre de noyaux initiaux se trouve diminué de moitié. Cette dernière varie d'un radionucléide à un autre, de plusieurs milliards d'années à une fraction de seconde.

Certains radionucléides se désintègrent plus rapidement que d'autres, et la vitesse de désintégration définit l'activité d'un nombre N de noyaux radioactifs, donné par la formule suivante (Ouahes, 1988) :

$$A = \lambda.N \quad (1.2)$$

L'unité de la radioactivité est le Becquerel (Bq) qui est défini comme étant le nombre de désintégrations par seconde.

Parmi les processus d'émission accompagnant le phénomène de désintégration, on distingue particulièrement l'émission de rayonnements particuliers alpha (α) ou bêta (β) et l'émission de rayonnements électromagnétiques gamma (γ).

I.1.3 Modes d'émission :

I.1.3.1 Désintégration alpha (α) :

Le noyau expulse une particule constituée de deux neutrons et de deux protons associés (noyau d'hélium), et se transforme en un nouveau noyau dans un état stable ou excité. Ce type de désintégration concerne les atomes lourds dont le nombre de charge (Z) est supérieur à 83 (Ivanovich, 1982). Le nouveau noyau, ainsi formé, peut subir une transition gamma, complémentaire avant d'aboutir directement ou indirectement par des états intermédiaires excités au niveau fondamental.

I.1.3.2 Désintégration bêta (β) :

Cette désintégration a lieu lorsque le noyau présente un excès de protons ou de neutrons, et consiste en l'émission d'une particule positive (β^+) ou négative (β^-).

On parle d'émission β^+ dite aussi positonique lorsque le noyau présente un excès en proton, ce qui conduit à la transformation d'un proton en un neutron. Quand à la

désintégration β^- appelée aussi électronique, elle consiste en la transformation de neutron en proton. C'est ainsi que la charge négative est emportée par un électron qui constitue le rayonnement β^- .

I.1.3.3 Emission gamma (γ) :

La radioactivité gamma est une transition de désexcitation nucléaire. Elle ne s'accompagne d'aucune émission nucléaire de nature corpusculaire.

L'énergie de transition est émise sous forme d'un photon.

I.2 Radioactivité naturelle et artificielle :

On a vu, précédemment, que certains corps sont naturellement radioactifs, mais Frederic et Irene Joliot Curie, au début de 1934 découvrirent que l'on pouvait former artificiellement à partir de noyaux stables de nouveaux noyaux, naturellement radioactifs, de courte vie moyenne, on les appellera " radioéléments artificiels".

Les radionucléides naturels et leurs descendants sont ceux qui se sont formés naturellement depuis l'époque de la création de la terre, par contre les radioéléments artificiels sont ceux qui sont introduits dans l'environnement par les activités humaines qu'à partir des années 1940.

I.2.1 La radioactivité naturelle :

La radioactivité naturelle prend son origine de deux sources, celle due aux rayons cosmiques, et les éléments radioactifs présents dans la croûte terrestre.

Environ 340 nucléides se trouvent dans la nature, dont 70 sont radioactifs. La plupart des éléments qui ont le nombre atomique supérieur à 83 possèdent des isotopes radioactifs (Ivanovich, 1982).

I.2.1.1. Radionucléides d'origine cosmique :

L'interaction des rayons cosmiques avec les éléments contenus dans l'atmosphère produit une gamme de radionucléides, 70% de ces radionucléides sont produits dans la stratosphère et 30% dans la troposphère. Parmi ces éléments, on peut citer le ^3H , ^{14}C , ^7Be ainsi que d'autres éléments (Tableau I.1), seul le ^{14}C est important (ONU, 1992).

I.2.1.2 Radionucléides primordiaux :

Les radionucléides primordiaux existaient dans l'écorce terrestre depuis sa création. On distingue les radionucléides primordiaux seuls (Tableau I.2), les plus importants sont le ^{40}K et le ^{87}Rb , et les radionucléides pères des filières de désintégration de ^{238}U , ^{235}U et ^{232}Th .

Tableau I.1 :
Radionucléides cosmiques
(Eisenbud , 1973)

Radionucléide	Période
^3H	12 a
^7Be	53 j
^{10}Be	$1,6 \times 10^6$ a
^{14}C	5 730 a
^{22}Na	2,6 a
^{24}Na	15,0 h
^{32}P	14 j
^{33}P	24 j
^{35}S	88 j
^{36}Cl	$3,1 \times 10^5$ a
^{38}S	2,87 h
^{38}Cl	37 m
^{39}Cl	55 m

Tableau I.2 :
Radionucléides primordiaux
(Eisenbud , 1973)

Radionucléide	Période
^{40}K	$1,26 \times 10^9$
^{50}V	6×10^{15}
^{87}Rb	$1,8 \times 10^{10}$
^{115}In	$6,0 \times 10^{14}$
^{123}Te	$1,2 \times 10^{13}$
^{138}La	$1,12 \times 10^{11}$
^{142}Ce	$> 5 \times 10^{16}$
^{144}Nd ^{144}Nd	$> 2,4 \times 10^{15}$
^{148}Sm	$> 2,0 \times 10^{14}$
^{146}Sm	$> 1 \times 10^{15}$
^{152}Cd	$1,1 \times 10^{14}$
^{156}Dy	$> 1 \times 10^{15}$
^{174}Hf	2×10^{15}
^{176}Lu	$2,2 \times 10^{10}$
^{180}Ta	$> 1 \times 10^{12}$
^{187}Re	$4,3 \times 10^{10}$
^{147}Sm	$1,05 \times 10^{11}$
^{190}Pt	$6,9 \times 10^{11}$

I.2.1.3 Séries de désintégration de l'U et de Th :

Tous les éléments naturels avec un nombre atomique supérieur à 83 sont radioactifs (Ivanovich , 1982). La plupart des radioéléments naturels appartiennent aux trois chaînes radioactives, présentées dans la figure I.1.

La première chaîne ou famille est celle de l' ^{238}U , ce dernier est le chef de file, qui suite à 14 transformations aboutit à l'élément stable (^{206}Pb). la forme générale des nombres de masse des éléments de cette chaîne est $(4n + 2)$ Le thorium ^{232}Th est le chef de file de la série 4 ou la série du thorium avec le ^{208}Pb comme produit stable.

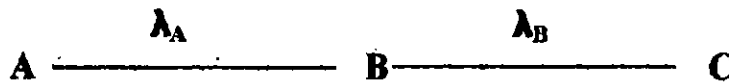
ELEMENT	SERIES U-238					SERIES Th-232					SERIES U-235				
Neptunium															
Uranium	U-238 4.49×10 ⁹ ans.		U-234 2.48×10 ⁵ ans.										U-235 7.13×10 ⁸ ans.		
Protactinium		Pa-234 1.18 min.												Pa-231 3.25×10 ⁴ ans.	
Thorium	Th-234 24.7 jours.		Th-230 7.5×10 ⁴ ans.			Th-232 1.39 ×10 ¹⁰ an.		Th-228 1.90 ans.					Th-231 25.6 heurs.		Th-227 18.6 jours.
Actinium							Ac-228 6.13 heurs.							Ac-227 22 ans.	
Radium			Ra-226 1622 ans.				Ra-228 6.7 ans.		Ra-224 3.64 jours						Ra-223 11.1 jours.
Francium															
Radon			Rn-222 3.825 jours.						Rn-220 54.5 sec.						Rn-219 3.92 sec.
Astatine															
Polonium			Po-218 3.05 min.		Po-214 1.6×10 ⁻⁴ sec.			Po-210 138.4 jours.		Po-296 158 sec.		Po-212 3×10 ⁻⁷ sec.			Po-215 1.83×10 ⁻³ sec.
Bismuth				Bi-214 19.7 min.		Bi-210 50 jours.				Bi-212 60.5 min.					Bi-211 2016 min.
Plomb			Pb-214 26.8 min.		Pb-210 21.4 an.		Pb-206 Plomb stable		Pb-112 10.6 heurs.		Pb-208 Plomb stable				Pb-211 36.1 min.
Thallium										Tl-208 3.1 min.					Tl-207 4.79 min.

Figure I.1: Séries naturelles de désintégration radioactive (Bennadji .K ,1987)

Enfin, la troisième famille est la série $(4n + 3)$ ou série d'actinium dont le père est ^{235}U qui se termine par l'élément stable ^{207}Pb .

Au sein de ces chaînes radioactives, il existe une relation quantitative qui lie entre des membres d'une même série et qu'on doit prendre en considération.

Considérons le cas particulier de deux isotopes radioactifs d'une même série, l'isotope (père) A avec une longue demi-vie, et l'isotope (fils) B avec une courte demi-vie :



La transformation radioactive de A conduit à la formation de l'isotope B qui se transforme en même temps.

Cependant, après un certain temps, l'activité du fils sera égale à celle du père. Dans ces conditions, les deux radioisotopes sont dits en équilibre séculaire. (Cember, 198)

La cinétique du processus dépend de la période radioactive du père et de celle du fils. Néanmoins, il a été établi que dans le cas particulier où la période du fils est négligeable devant celle du père ($\lambda_B \gg \lambda_A$), on peut considérer que l'équilibre séculaire est particulièrement atteint après sept fois la période du fils, et ce depuis la rupture totale de l'équilibre.

1.2.2. Radioactivité artificielle :

En plus de la radioactivité naturelle déjà présente dans l'environnement, de nombreux radionucléides artificiels sont introduits dans les différents compartiments de l'environnement, et ont essentiellement comme origines, les tests d'armes nucléaires dans l'atmosphère, les rejets de l'industrie nucléaire et les apports accidentels.

1.2.2.1 Classification des radionucléides artificiels :

Les radionucléides artificiels sont classés en 3 catégories; à savoir les produits de fission, les produits d'activation et les transuraniens.

Les produits de fission résultent de la cassure de radionucléides fissiles tels que ^{235}U , ^{233}U et le ^{239}Pu . Certains de ces radionucléides sont liquides (^{144}Ce , ^{137}Cs , ^{95}Zr , ^{90}Sr , d'autres en phase gazeuse (^{85}Kr 85), et certains peuvent exister sous forme de liquide ou de gaz ($^{129,131}\text{I}$), ils se forment, au sein même du combustible du réacteur.

Les produits d'activation résultent du bombardement par les neutrons d'éléments

stables présents dans les gaines de combustibles, les plus importants sont (^{55}Fe , ^{60}Co , ^{65}Zn , ...).

Enfin, les transuraniens qui se caractérisent par un nombre atomique supérieur à 92, et une longue période, les plus importants sont le $^{239,238}\text{Pu}$, ^{241}Am et le ^{239}Np . (PNUE / AIEA, 1992)

I.2.2.2 Sources des radionucléides artificiels :

L'introduction de ces radionucléides artificiels dans l'écosystème planétaire est due essentiellement aux tests d'armes nucléaires dans l'atmosphère, aux rejets de l'industrie nucléaire et enfin aux apports accidentels.

I.2.2.2.1 Tests d'armes nucléaires :

La principale source de contamination de l'environnement par les radionucléides artificiels est celle de test d'armes nucléaires dans l'atmosphère. Les radionucléides libérés dans l'environnement suite aux explosions, sont essentiellement ^{89}Sr , ^{90}Sr , ^{137}Cs et ^{238}Pu , ^{242}Am , ^{244}Cm .

Le tableau I.3 liste les différents radionucléides dégagés lors des essais d'armes nucléaires.

I.2.2.2.2 Rejets de l'industrie nucléaire :

Les radionucléides proviennent des rejets des réacteurs nucléaires et du retraitement du combustible nucléaire.

Après l'utilisation du combustible dans un réacteur, les déchets radioactifs sont rejetés dans l'environnement sous forme liquide ou gazeuse.

Le retraitement du combustible consiste à récupérer les radionucléides fissibles pour les réutiliser après l'élimination des produits de fission.

I.2.2.2.3 Les apports accidentels :

L'exploitation de l'énergie nucléaire ne s'est pas faite sans accidents. Ces accidents ont engendré une contamination radioactive de l'environnement. Le plus spectaculaire de ces accidents est celui de Chernobyl survenu le 26 avril 1986.

(Tableau I.4).

Tableau. 3 : Les radionucléides issus de tests d'armes nucléaires

Radionucléides	Période
Sr-89	50,5 j
Sr-90	28,6 a
Zr-95	64,0 j
Ru-103	39,4 j
Ru-106	368 j
I-131	8,4 j
Cs-136	13,2 j
Cs-137	30,2 a
Ba-140	12,8 j
Ce-141	32,5 j
Ce-144	284,0 j
PU-238	87,7 a
PU-239	24 100 a
PU-240	6 570 a
PU-241	14,4 a
PU-242	376×10^2 a
Am-242	152 a
Cm-244	18,1 a

Tableau 1.4 : Les apports estimatifs des radionucléides issus de l'accident de Chernobyl (26 avril 1986) :

Radionucléides	Apports (10^{15} Bq)
^{137}Cs	~ 100
^{134}Cs	~ 50
^{90}Sr	~ 08
^{106}Ru	~ 35
^{144}Ce	~ 90.
^{110}Ag	~ 1,5
^{125}Sb	~ 03
$^{240,239}\text{Pu}$	~ 0,055
^{238}Pu	~ 0,025
^{241}Pu	~ 05
^{241}Am	~ 0,006
^{242}Cm	~ 0,6
$^{244,243}\text{Cm}$	~ 0,006

I.3 Transfert et distribution des radionucléides dans l'environnement

Les radionucléides naturels contenus dans l'écorce terrestre et dans l'atmosphère, ainsi que les radionucléides artificiels rejetés dans les différents milieux, subissent une mobilité et un transfert entre les différents compartiments de l'environnement (Figure I.2).

Ce transfert est régi par divers processus naturels qui diffère d'un compartiment à un autre. En effet, les eaux lessivant les terres transportent des quantités de radionucléides, incorporés dans l'écorce terrestre, vers le milieu marin. Ainsi, le radon et ses isotopes qui sont les produits de désintégration de l'U et du Th se dégagent constamment dans le sol et diffusés dans l'air. Une fois formés, ils se fixent, sur les poussières et autres particules atmosphériques, et constituent les retombés naturels qui se déposent sur la terre et les océans (OMS, 1969).

Par ailleurs, les radionucléides présents dans l'atmosphère (d'origine cosmique) seront entraînés, par pluies et diffusion, dans les couches superficielles des sols et des océans. En outre, le déversement des radionucléides anthropiques peut se faire dans l'atmosphère ou dans l'eau (cours d'eau ou mer), ces radionucléides finissent par atteindre les océans.

Enfin, les radionucléides déposés ou rejetés dans le milieu marin, en tant que compartiment d'accumulation, se dispersent, et leur dispersion est en général liée aux courants et à la sédimentation.

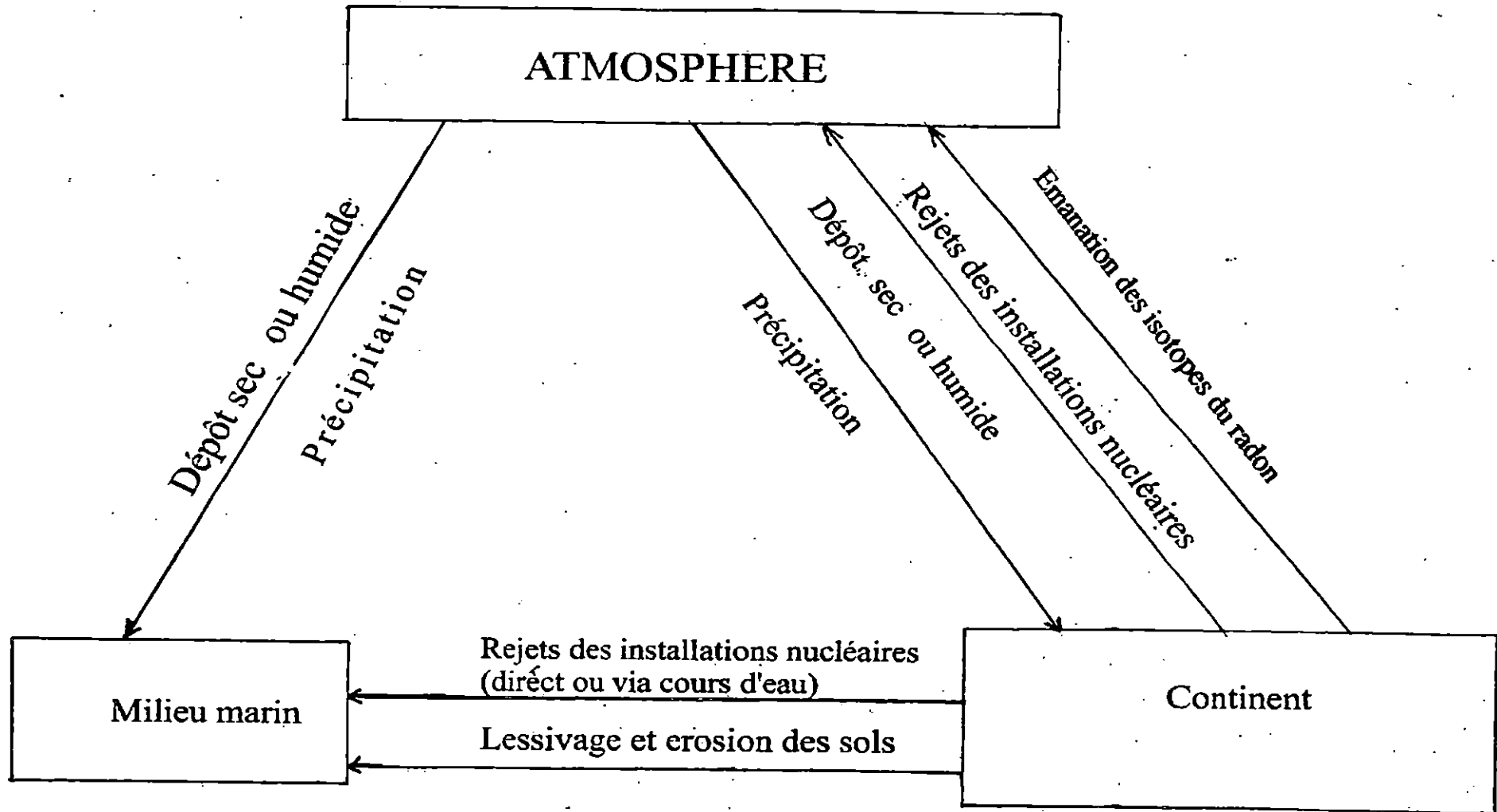


Figure L2 : Voies de transfert des radionucléide entre les différent compartiments de l'environnement

I.3.1 Répartition des radionucléides dans l'écorce terrestre :

Il existe dans la répartition des corps radioactifs à la surface de la terre, un fait dont l'importance est considérable, c'est la dispersion extrême et pratiquement homogène de ces éléments.

En effet, les radionucléides existent à l'état diffus et se trouvent en quantités infiniment petites, mais toujours mesurables dans toutes les substances terrestres.

(Coppens, 1957).

Des calculs fondés sur des données expérimentales, ont permis d'évaluer la teneur de l'uranium pour l'ensemble de l'écorce terrestre à environ 4 parties par million (ppm). Le thorium est plus abondant que l'uranium, on évalue sa teneur à 12 ppm. (Coppens, 1957). Le milieu terrestre contient aussi d'autres radionucléides naturels, tel que le ^{40}K et le ^{14}C , ainsi que des métaux lourds radioactifs appartenant aux familles radioactives de l'uranium et de thorium. (Bulletin de l'AIEA, 1997)

La couche superficielle de l'écorce terrestre reçoit également des radionucléides artificiels, les plus importants sont le ^{137}Cs et le ^{90}Sr . Ces derniers se comportent comme le calcium. Cependant, si le ^{90}Sr est assimilé facilement par la plante comme son homologue nutritif le Calcium, le ^{137}Cs par contre, est moins assimilé, car il est fermement fixé par les argiles et n'est pas facilement échangeable. En dépit de la différence de leur comportement, le ^{137}Cs et le ^{90}Sr sont contenus principalement dans les 10 cm supérieurs du sol et ce, quel que soit le type de sol et de végétation (Bennadji, 1987).

I.3.2 Distribution verticale des radionucléides dans l'atmosphère :

En plus de la gamme de radionucléides cosmogéniques produits dans l'atmosphère, vient s'ajouter d'autres radionucléides (naturels et anthropiques).

La combinaison de ces deux sources d'apports, produit une distribution verticale de la concentration des radionucléides dans l'atmosphère.

I.3.2.1 Radionucléides naturels :

Les particules de poussières dans l'atmosphère contenant des radionucléides naturels ont deux sources :

- montée continue du continent.

- source brusque et violente : éruption volcanique.

Ces deux sources contribuent à une distribution verticale principalement à long terme de la concentration du ^{226}Ra et à une distribution verticale uniforme du ^{210}Pb qui est le résultat de la montée du gaz (^{222}Rn) du continent. (Kownacka , 1995)

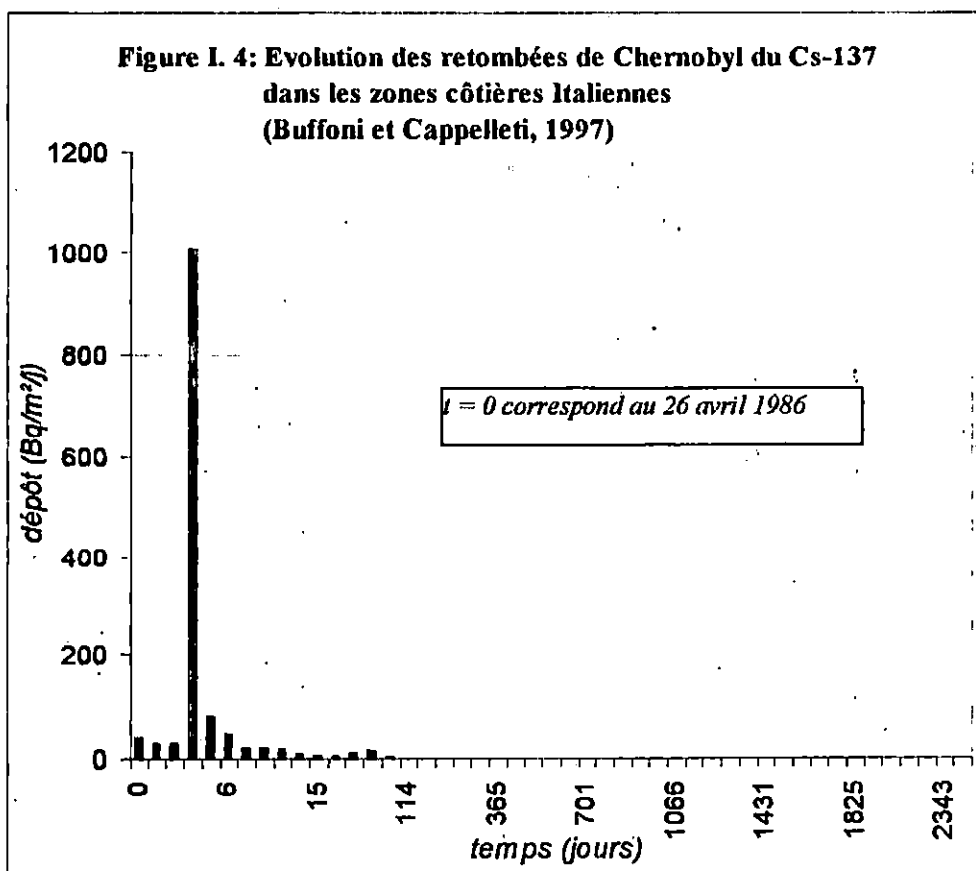
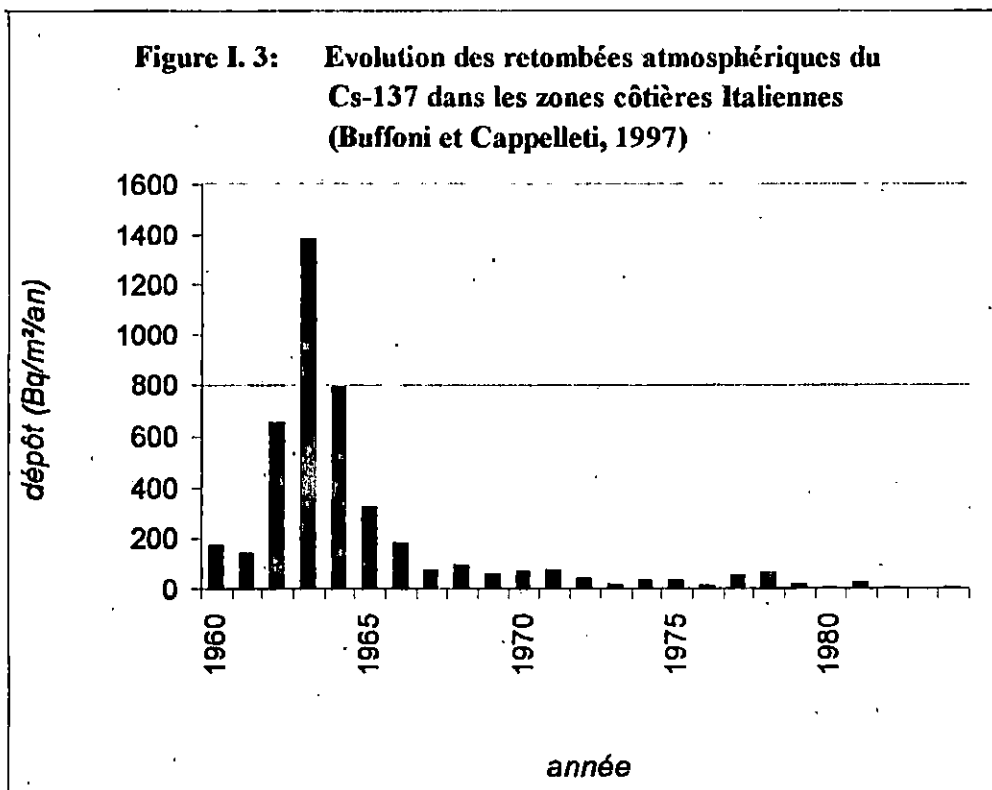
Kownacka a estimé, en utilisant les principales concentrations dans la période 1980-1993 du ^{226}Ra contenues dans l'atmosphère entière entre le sol et 15 Km d'altitude à environ $2 \cdot 10^{13}$ Bq. (Kownacka , 1995)

1.3.2.2 radionucléides anthropiques :

L'introduction dans l'atmosphère de radionucléides anthropiques est due essentiellement au test d'armes nucléaire dans l'atmosphère.

La période intense de tests d'armes nucléaires dans l'atmosphère, terminée en octobre 1980, a engendré une distribution verticale des radionucléides artificiels dans l'atmosphère, mais cette distribution est renversée par l'accident de Chernobyl.

Ces radionucléides, libérés dans l'atmosphère, finissent par rejoindre les surfaces des terres et des océans sous forme de retombées. Les figures 1.3 et 1.4 illustrent l'évolution de ces retombées dans les périodes de 1960-1984 et de l'après Chernobyl.



Chapitre II :
Les radionucléides dans le milieu marin

Les radionucléides présents dans le milieu marin ont deux origines distinctes, l'une naturelle et l'autre artificielle.

Les radionucléides naturels proviennent de deux différentes sources. La source principale est constituée par le recyclage et la désintégration des minéraux et des roches terrestres qui donnent lieu au ^{40}K , ^{87}Rb , ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U et à d'autres radionucléides issus de la désintégration de ces trois derniers éléments. En plus, une source moins importante est constituée par les radionucléides produits dans l'atmosphère, comprenant en particulier le ^3H et le ^{14}C qui atteignent le milieu marin à travers le cycle hydrologique.

Les radionucléides artificiels sont introduits dans le milieu marin par diverses voies, notamment par les retombées des tests d'armes nucléaires, des rejets d'effluents liquides des installations nucléaires (direct ou via les cours d'eau), par les apports accidentels et par l'immersion des déchets radioactifs dans les sédiments du fond marin. Bon nombre de ces radionucléides artificiels ont une période courte et se désintègrent rapidement après la formation. Cependant, une autre catégorie importante de radionucléides, de par leurs demi vies relativement importantes, persiste dans le milieu marin, pour de longues périodes.

Les radionucléides (naturels et artificiels), ainsi présents, dans l'environnement marin subissent une dispersion causée par divers processus physiques et biologiques. Dans la masse d'eau, les particules en suspension présentent une importante capacité de fixation à l'égard de nombreux radionucléides. Cette rétention dépend à la fois des caractéristiques physico-chimiques du radionucléide et des caractéristiques du sédiment.

Les radionucléides atteignent les sédiments du fond, par la sédimentation des particules organiques et minérales. Une fois arrivés au fond, ces radionucléides subissent des perturbations causées par des processus physiques tel que, le déplacement horizontal des sédiments due aux courants de fond, et une perturbation biologique causée par des organismes benthiques. Toutefois, ces mêmes radionucléides peuvent regagner la colonne d'eau par leur remise en suspension.

La concentration des radionucléides naturels et artificiels les plus importants dans le milieu marin sont représentés dans les Tableaux II.1 et II.2.

Tableau II.1: Concentrations moyennes d'activité de radionucléides naturels dans le milieu marin (PNUE / AIEA, 1992)

Radionucléides	Eau de mer(mBq/l)	Sédiments(mBq/kg)
<u>Radionucléides d'origine terrestre</u>		
⁴⁰ K	1,26 x 10 ⁴	7 x 10 ⁵
⁸⁷ Rb	110	-
<u>Filières de désintégration de l'Uranium</u>		
²¹⁰ Pb	1,9	1,5 x 10 ⁵
²¹⁰ Po	1,1	"
²²⁶ Ra	3,7	"
²³⁰ Th	0,015	"
²³⁴ U	44	1,9 x 10 ⁴
²³⁸ U	37	1,1 x 10 ⁴
<u>Radionucléides d'origine cosmique</u>		
³ H	0,6	-
¹⁴ C	3,7	0,0015-0,015

Tableau II.2: Niveaux du ^{137}Cs dans les eaux et les sédiments de surface de la mer Méditerranée dans l'avant et l'après Chernobyl.
(PNUE/AIEA, 1992)

Période	Eau de mer			Sédiments		
	Localisation	Epoque	Niveau de ^{137}Cs (mBq l ⁻¹)	Localisation	Epoque	Niveau de ^{137}Cs (BqKg ⁻¹) P.s
Avant Tchernobyl	<u>Zones côtières</u>			<u>Zones côtières</u>		
	Littoral français	Avril 86	3,1	Littoral français	Fév 86	5
	Estuaire du Rhône	"	15,5	Estuaire du Rhône	"	40-170
	La spezia, Italie	62-65	32	Littoral Corse	85	12
		81-85	4,1	Montalto di Castro, Italie	83	2-10
	Rovinj, Yougoslavie	78-85	4,4	La spezia, Italie	82-85	8
	<u>Zones du large</u>			Littoral Sarde	"	4
	Méditer. Ouest	70	8,1	Zone de Latina, Italie	"	5
	"	74	5,6	<u>Zones du large</u>		
	Méditer. N-O	75-78	5	Gibraltar	81-82	7
	Méditer. S-O	75	4,4	Méditer. N-O	"	3
	Mer tyrrhénienne	75-77	4,4	Méditer. S-O	"	10
	Mer Adriatique	77	5			
	Mer Ionienne	77	5			
	Méditer. S-E	77	5			
	Ensemble de la Médit		4,6			
	Après Tchernobyl	Littoral français	Nov 86	5,7	Littoral français	Nov 86
		Sept 87	3,6	Estuaire du Rhône	"	390
Au large de l'estuaire de Rhône		Sept 86	10-25	Littoral Corse	Sept 86	28
Golfe du Lion		Sept 86	2-12		Juill 87	22
		Déc 86	2-8	La spezia, Italie	Juin 86	5*
Monaco		Mai 86	65-510		Oct 86	7*
		Juin. 86	25	Naples, Italie	Sept 86	4*
La spezia, Italie		Mai 86	405		Oct 86	5*
		Juin. 86	58	Venise, Italie	Juin 86	7*
		Oct 86	14		Oct 86	14*
Naples, Italie		Sept 86	24	Tarante, Italie	Sept 86	1*
		Oct 87	22	Mer Adriatique	Été 86	8
Mer Adriatique		Été 86	51			
Rovinj, Yougoslavie	Mai 86	100				
	Mai 88	<15				
Split, Yougoslavie	Mai 86	490				

* Les niveaux sont exprimés en BqKg⁻¹ poids humide.

II.1 Dispersion et sédimentation dans la masse d'eau:

La mobilité des radionucléides dans l'environnement marin est compliquée du fait qu'elle dépend de plusieurs facteurs qui sont à la fois propres aux radionucléides (forme physico-chimique) et externes, liés aux caractéristiques du milieu receveur.

Les radionucléides présents dans l'eau de mer peuvent être classés en deux groupes: ceux qui se dissolvent maintiennent dans l'eau, tels que les isotopes de l'Uranium et ceux du Cesium qui présentent une certaine réactivité vis à vis des particules et quittent l'eau par adsorption, coprecipitation ou par des processus biologiques, tels que les isotopes du Thorium et ceux du Plomb(Ivanovich, 1982).

Les radionucléides insolubles peuvent atteindre le fond marin par simple sédimentation, être assimilés par les organismes et transportés en profondeur, ou encore se fixer sur le phytoplancton, la surface des plantes et des algues. Dans les eaux littorales peu profondes, où existe une abondance en particules vivantes et débris de biote, le taux de sédimentation est important qui peut aller de 0,1 jusqu'à 10 cm/an (Ivanovich, 1982). Ce phénomène de rétention est observé pour le cas du ^{137}Cs , qui est fortement adsorbé à la surface des substances particulaires en suspension, spécialement les argiles(OMS, 1987).

Par ailleurs, dans le cas de leur assimilation par les organismes, les radionucléides peuvent présenter une grande dispersion du fait de leur transfert par la chaîne alimentaire.

En plus de ces processus biologiques, l'advection et la diffusion constituent d'autres mécanismes importants de la dispersion des radionucléides dans le milieu marin.

L'advection est caractérisée par des mouvements d'eau causés par des courants de marée et de courants généraux. La diffusion est, par contre, le fait de forces tangentielles qui s'exercent entre les masses d'eau en contact, et les perturbations engendrées par les vents-vagues produisent ainsi les processus de turbulence jouant un rôle important dans la diffusion de la matière (Bennadji, 1987). Dans le cas des eaux littorales, c'est la houle qui assure la diffusion, tandis que la marée engendre l'advection (dérive). Ces deux phénomènes peuvent manifester aussi bien dans le sens horizontal que dans le sens vertical. Dans ce dernier cas, l'échelle peut être limitée par la présence d'une thermocline (couche d'eau de mer dont la température diminue rapidement avec la profondeur) (Amiard, 1980).

En plus de ces processus, le mélange turbulent joue un rôle dans la dispersion des radionucléides. Ce processus de mélange est largement conditionné par le cycle saisonnier de phénomènes de stratification, qui est accompagné par des mouvements d'eau qui affectent la distribution des radionucléides de deux manières différentes: soit par effet direct, ou à travers des modifications chimiques de l'eau et des sédiments.

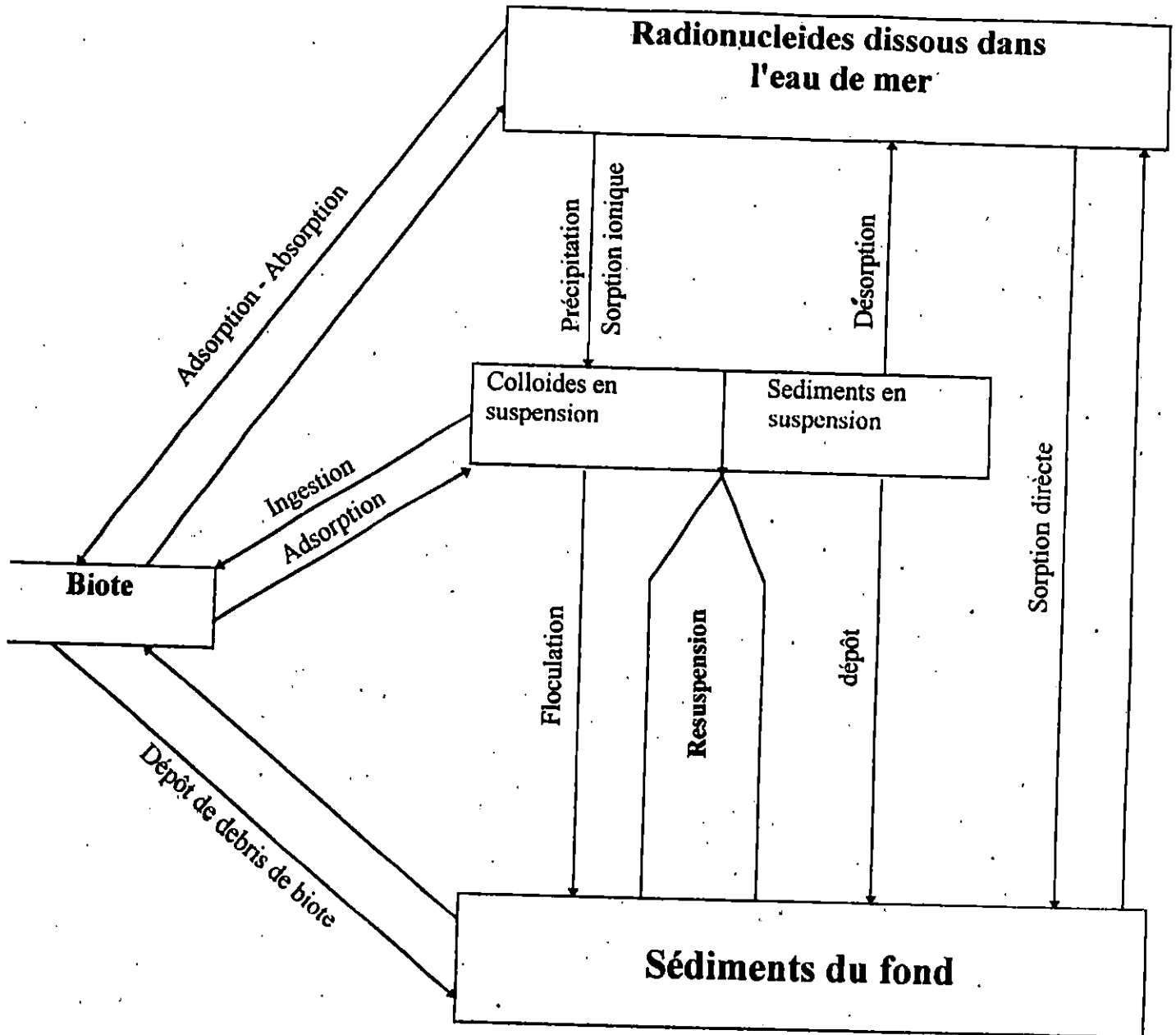


Figure II.1: La dispersion des radionucléides dans le milieu marin (Eseinbud, 1982)

L2 Comportement et devenir dans les sédiments :

Les sédiments du milieu marin peuvent résulter de diverses origines, notamment détritique, biologique et chimique. Les principaux constituants sont d'origine détritique.

La contamination radioactive de ces sédiments peut se faire directement à partir de l'eau surnageante à travers l'interface eau-sédiment, ou par l'intermédiaire de phénomène de précipitation ou sédimentation amenant un dépôt de particules contaminées (Amiard, 1980).

La teneur des sédiments en matière radioactive est fonction des caractéristiques des radionucléides d'une part, et de celles des sédiments, d'autre part.

Les radionucléides présents dans les sédiments peuvent subir une migration verticale au sein de la colonne de sédiment. Cette migration est assurée par trois processus fondamentaux, à savoir; la diffusion moléculaire, la diffusion physique par les courants de fond et l'action des organismes marins. Ce dernier processus est appelé bioturbation ou bioperturbation.

II.2.1 Sorption des radionucléides sur les sédiments:

La concentration des radionucléides dans un sédiment par rapport à la teneur correspondante dans l'eau surnageante dépend non seulement des caractéristiques du sédiments, mais aussi des propriétés physiques et chimiques du radionucléide en question.

En effet, la sorption des radionucléides sur les particules sédimentaires n'est pas un processus irréversible.

La situation d'équilibre correspond à un rapport déterminé entre la concentration du radionucléide dans les sédiments et la concentration correspondante dans l'eau. Ce rapport est définie comme étant le coefficient de distribution, K_d :

$$K_d = \text{concentration dans le sédiment (Bq/Kg) / concentration dans l'eau (Bq/l).}$$

Pour un sédiment donné, ce coefficient varie d'un radionucléide à un autre, le Tableau II.3 donne les valeurs de K_d pour certains radionucléides.

De même la capacité de sorption d'un radionucléide donné par un sédiment dépend des caractéristiques physiques (granulométrie) et chimiques (teneur en carbonates, en matière organique) du sédiment.

Tableau II.3: Fixation des radionucléides par les limons (Amiard, 1980)

radionucléide	Coefficient de distribution (K_d)
Sr-90	15,8
Cs-137	$8,70 \times 10^2$
Ru-106	$4,86 \times 10^3$
Ce-144	$8,67 \times 10^4$
Pu-239	$8,96 \times 10^4$
U	10^4
Th	10^6

II.2.1.1 Granulométrie :

D'une manière générale, la fraction fine du sédiment accumule des quantités de radionucléides beaucoup plus importantes que la fraction grossière. La sorption sélective sur les particules fines est liée au fait que la surface disponible est considérable par rapport au volume.

Heterington et al. (Amiard, 1980) ont constaté que l'activité spécifique du ^{137}Cs augmente quand la dimension des grains décroît. Le Tableau II.4 illustre un exemple d'un sédiment marin contaminé in situ par les effluents de l'usine de retraitement des combustibles irradiés de la Hague

Par contre le ^{40}K qui existe à l'état naturel dans le milieu et qui est présent à l'intérieur des grains, présente des concentrations substantiellement constantes quelle que soit la taille des particules. Mais cette relation taille/activité est peut sensible pour le ^{226}Ra (Got, 1974).

Tableau II.4 : Influence de la taille des particules sur l'accumulation de divers radionucléides par les sédiments. (Amiard, 1980)

Taille des particules	^{137}Cs (pCi/Kg sec)	^{40}K (pCi/Kg sec)
< 28 μm	4 699	11 671
28 à 50 μm	990	10 497
50 à 100 μm	933	13 830

II.2.1.2 Teneur en matière organique :

La teneur en matière organique du sédiment a manifestement un effet sur la sorption des radionucléides, mais cet effet peut être positif ou négatif, selon le radionucléide considéré et les conditions du milieu.

D'après Amiard(1980), le coefficient de distribution (K_d) du ^{137}Cs passe de 832 pour un sédiment brut (avec la matière organique) à 1091 pour un sédiment dépourvu de la matière organique (Amiard, 1980).

Les études effectuées en milieu marin montrent que la fixation du ^{137}Cs sur la matière organique est pratiquement nulle et la matière organique entrerait même en compétition avec ce radionucléide pour se fixer sur d'autres support.

Cependant, la teneur en matière organique constitue, en générale, un facteur favorisant les concentrations naturels, notamment le ^{40}K .

II.2.1.3 Teneur en carbonates :

Les travaux de Perset (1976) montrent que la fixation des radionucléides sur les sédiments, varie notablement en fonction de la forme cristalline et que les calcites fixent plus de radionucléides que les aragonites (Amiard, 1980).

D'une façon générale, l'augmentation des carbonates entraîne une élévation des teneurs en Radium et une décroissance des teneurs en ^{40}K et du ^{137}Cs .

II.2.2 Devenir des radionucléides dans la colonne de sédiment :

Nous venons de voir que les radionucléides sont liés fréquemment à la fraction fine du sédiment, argiles et hydroxydes en particulier.

A l'interface eau-sédiment, ces microparticules sont susceptibles d'être remises en suspension par le courant de densité appelé courant de turbidité qui parvient le plus souvent dans son trajet jusqu'aux profondeurs des plaines abyssales ou par l'activité des organismes benthiques. Cependant, on doit signaler que les éléments radioactifs adsorbés sur les particules fines, dans l'extrême surface du sédiment, présentent un déplacement spatial très considérable sous l'action des courants marins.

Par ailleurs, les éléments présents dans les couches supérieurs de sédiment peuvent être entraîné dans la colonne du sédiment, soit par simple diffusion ou par les organismes fouisseurs.

II.2.2.1 Diffusion moléculaire :

La diffusion moléculaire représente la diffusion ou la pénétration à travers une couche sédimentaire, d'atomes, d'ions et de molécules. Cette diffusion est influencée par la forme sous laquelle se trouve le radionucléide (soluble ou particulaire) et par les caractéristiques du milieu.

Les facteurs majeurs qui affectent la diffusion moléculaire sont la compaction des sédiments et la viscosité des eaux interstitielles. La compaction, qui est le tassement des sédiments à travers le temps, inhibe la pénétration dans les sédiments des radionucléides provenant de la colonne d'eau. Quant à la viscosité des eaux interstitielles elle diminue avec l'augmentation de la température et varie proportionnellement avec la salinité.

Ainsi dans le cas où la viscosité est importante, l'eau devient plus dense et les molécules d'eau forment une barrière pour les radionucléides.

La diffusion moléculaire est beaucoup moins importante devant l'action des organismes benthiques sur ce type de migration.

II.2.2.2 Bioturbation :

L'activité biologique des organismes benthiques peut conduire au mélange de la carotte sédimentaire jusqu'à une profondeur. En effet, certains organismes marins tels le crabe et l'escargot mélangent la surface du sédiment par creusement ou traînement des pattes. De même, les polychètes et les bivalves se cachent dans les sédiments et se nourrissent de ces derniers.

Remaniement des sédiments, est appelé bioturbation, qui constitue un vecteur de transport en profondeur et un facteur de redistribution vertical de la radioactivité dans les sédiments marins.

La Figure II.2 illustre le mélange biologique des sédiments dans le fond marin.

La profondeur de la couche mélangée et l'intensité du processus de bioturbation dépend de la concentration des organismes benthiques qui est fonction de la production primaire.

Dans les sédiments marins côtiers, la couche de mélange peut atteindre un mètre de profondeur (Stordal et al., 1985), alors que les sédiments des régions d'abyssales sont généralement bien mélangés jusqu'à une profondeur moyenne de 8 cm (Thomson et al., 1988).

- 1) Spherecinus granularis
- 2) Holloturia SP
- 3) Nassa mutabilis
- 4) Cypridina SP
- 5) Neris SP
- 6) Donax senistratus
- 7) Pagurus SP
- 8) Posidonia oceanica

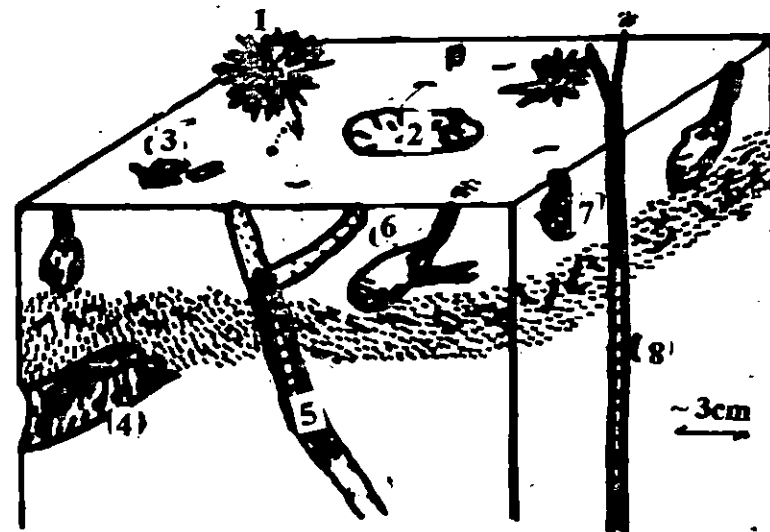


Figure II.2: Représentation schématique du phénomène de la bioturbation

Chapitre III :

Interaction des rayons gamma avec la matière et détecteurs utilisés

Les rayonnements indirectement ionisants sont formés de particules non chargées (neutrons) et de rayonnements électromagnétiques (γ).

Lorsqu'un rayonnement ionisant pénètre dans un milieu matériel, il interagit avec les atomes de ce milieu et l'interaction est généralement accompagnée d'un transfert d'énergie. La détection des rayons gamma est basée sur la mise en évidence des interactions de ces rayonnements avec la matière.

III.1 Processus d'interaction des rayons γ avec la matière :

On distingue trois processus principaux d'interaction des rayonnements γ avec la matière; l'absorption photoélectrique, la diffusion Compton et la production de paires.

III.1.1 Absorption photoélectrique :

Dans le cas de l'absorption photoélectrique, le photon γ dans la matière est très différent de celui des particules incident transmet toute son énergie à un électron de l'atome ciblé, généralement celui de la couche K ou L. Il est ainsi éjecté avec une énergie cinétique (E_C) égale à la différence entre l'énergie du photon (E_γ) et l'énergie de liaison de l'électron (Figure III.1):

$$E_C = E_\gamma - E_L \quad (\text{III.1})$$

Cet effet est prépondérant aux faibles énergies et sa section efficace est d'autant plus grande que le nombre atomique de la cible est plus grand (Daniel, 1990)

III.1.2 Diffusion Compton :

Dans ce mécanisme le photon gamma interagit avec un électron et lui transfère une partie de son énergie. L'interaction donne naissance à un photon diffusé d'énergie plus faible et un électron appelé électron Compton (Figure III.2).

L'effet Compton est prépondérant dans les énergies moyennes

III.1.3 Production de paires :

Ce processus ne peut avoir lieu que lorsque l'énergie du photon est supérieure à 1,02 Mev (Daniel, 1966). Celui-ci est absorbé lors de son passage à proximité d'un noyau et, il y a création d'une paire positron - électron (e^+ , e^-).

L'électron perd son énergie par ionisation et excitation des atomes qu'il rencontre et le positron opère de même, mais dès qu'il rencontre un électron, il se combine avec lui et la réaction donne naissance à deux photons gamma, d'énergie 511keV chacun, émis selon deux

directions opposées (Figure III.3)

Cet effet est prépondérant aux énergies élevées.

III.2 Détection des rayons γ :

Lors du passage d'un rayonnement dans la région sensible du détecteur, il y a transfert total ou partiel d'énergie du rayonnement incident, qui conduit soit à une ionisation ou à une excitation.

Les rayonnements γ sont détectés par l'intermédiaire des porteurs de charges mis en mouvement dans le volume sensible du détecteur.

III.2.1 Détecteurs utilisés :

La détection des rayons γ est assurée par trois familles de détecteurs; à savoir les détecteurs à gaz, à scintillation et à semi-conducteur.

III.2.1.1 Détecteurs à gaz :

Ce type de détecteurs est basé sur l'effet d'ionisation dans un milieu gazeux.

En général, le détecteur à gaz est constitué par un cylindre contenant un gaz ionisable, auquel sont reliés deux électrodes.

En appliquant une différence de potentiel entre ces deux électrodes, et au passage des particules de nature et de vitesse donnée c'est à dire pour des phénomènes ionisants, il y a création de paires d'ions. Un système de mesure permet de collecter les charges électriques sous forme d'impulsions de tension ou de courant. Les chambres d'ionisation sont des détecteurs à gaz les plus utilisés.

Il est à noter que les détecteurs à gaz ne sont pas utilisés en spectrométrie gamma.

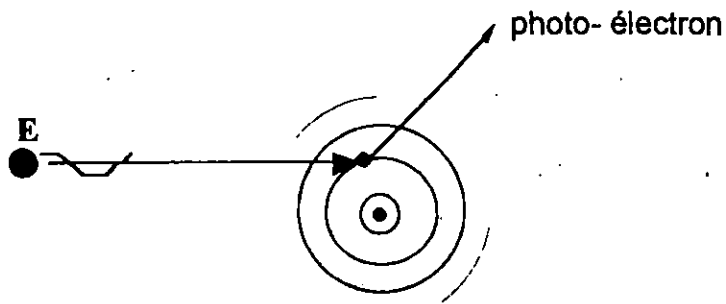


Figure III.1: Représentation schématique de l'effet photoélectrique

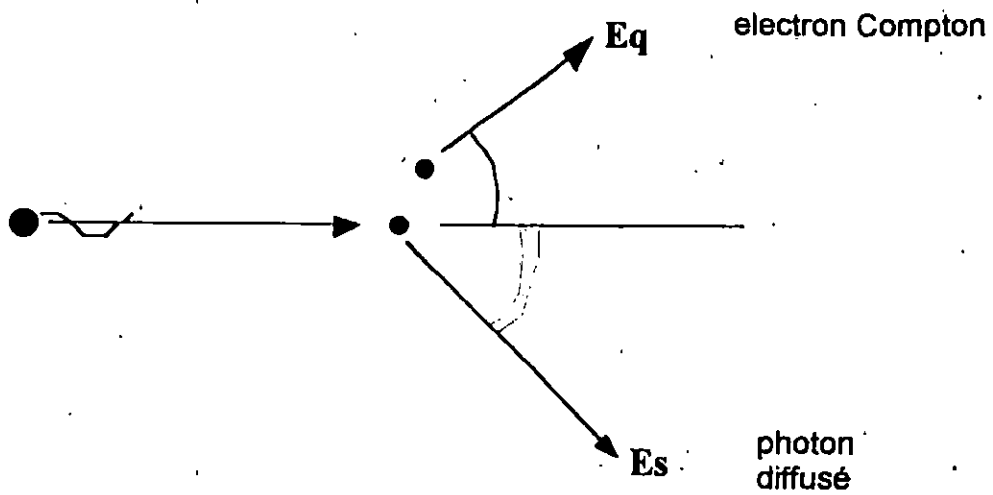


Figure III.2: représentation schématique de l'effet Compton .

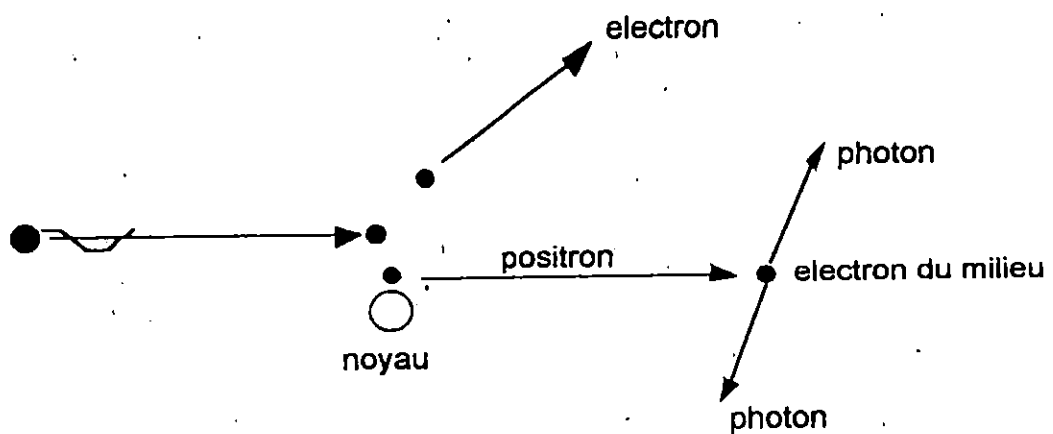


Figure III.3: représentation schématique de la production de paires

III.2.1.2 Détecteurs à scintillation :

Dans ce type de détecteur, l'interaction d'un photon gamma conduit à l'excitation de certains atomes du volume sensible.

Le milieu scintillon est couplé à un photo multiplicateur qui convertie le signal lumineux en impulsion électrique, et amplifie ce signal.

Le signal de sortie du photon photomultiplicateur est proportionnel à l'énergie cédée par le rayonnement détecté. Le scintillateur le plus utilisé en spectrométrie γ est l'Iodure de Sodium activé au Thallium NaI(Tl).

III.2.1.3 Détecteurs à semi-conducteur

Deux types de cristaux sont utilisés pour les détecteurs à semi-conducteurs : les cristaux dopés négativement (n) et les cristaux dopés positivement (p).

Un cristal de type (n) est prédominé par les porteurs de charges négatifs (électrons) et le type (p) par des porteurs de charges positifs (trous). L'association de ces deux cristaux forme une jonction p-n, où règne un champs électrique sur une faible épaisseur appelée zone de déplétion qui constitue la partie sensible du détecteur. Lorsqu'un photon γ interagit avec la jonction p-n, il y a production d'une paire électron-trou et à une impulsion électrique qui est collectée par les électrodes.

Les détecteurs à semi-conducteurs utilisés en spectrométrie γ sont : le Germanium dopé du Lithium Ge-Li et le Germanium de haute pureté Ge-Hp.

III.2.1.4 Comparaison:

Les caractéristiques qui diffèrent entre les détecteurs à scintillation et les détecteurs semi-conducteurs sont : la résolution en énergie et l'efficacité de détection. Les détecteurs à scintillation possèdent une très bonne efficacité de détection et permettent aussi une mesure quantitative et/ou qualitative, mais leur pouvoir de résolution est faible. Quand aux détecteurs à semi-conducteurs, ils sont caractérisés par leur grand pouvoir de résolution en énergie et une efficacité moyenne.

Chapitre IV :
Présentation du site d'étude

La baie de Bouismail située à environ 70Km à l'Ouest d'Alger, est limitée dans la partie Ouest par Ras El Amouch et dans sa partie Est par Ras-Acrata.

La baie de Bouismail est considérée comme la baie la plus grande sur les côtes algériennes. Elle a une ouverture de l'ordre de 40Km.(Figure IV.1) La plate forme continentale garde des dimensions plus modestes, avec une superficie de 350 Km² (Bousaboune, 1997); sa largeur oscille entre 4 Km devant Cherchel et 11 Km de l'embouchure de l'Oued Mazafran (Caulet, 1972).

La surface de la baie de Bouismail est généralement couverte de vases et de boues argilo - siliceuses dont une grande partie provient sans doute des apports limoneux du Mazafran (Caulet, 1972).

IV.1 Réseau Hydrographique :

Le réseau hydrographique débouchant dans la baie de Bouismail est essentiellement constitué des Oueds Nador et Mazafran. Ce dernier est le plus important de la baie. Il est formé par la réunion des Oueds Djer, Chiffa et Bouroumi.

Le bassin versant, assez vaste de l'Oued Mazfran peut être évalué à 185 000 ha dont 110 000 ha en montagne (Braik, 1989).

Chaque année, une grande masse de matériaux est charriée par l'Oued qui connaît les débits les plus important de la région.

IV. 2. Facteurs Hydrodynamiques :

On regroupe, sous le nom de facteurs hydrodynamiques, tous les facteurs liés au mouvement de l'eau tels que les vagues, les courants et les marées. Les facteurs hydrodynamiques sont des agents érosifs très efficaces et jouent un rôle déterminant dans la répartition des sédiments. L'hydrodynamisme d'une région dépend des conditions météorologiques, c'est ainsi que le vent influe directement sur les courants locaux.

IV.2.1 Vents :

Les observations fournies par la station météorologiques de Bouismail (1956-1960) (Meziane, 1987), font ressortir deux directions moyennes des vents. Au large la baie est exposée essentiellement aux vents du nord-est en été et aux vents Nord-Nord-Ouest en hiver (Tableau IV. 1).

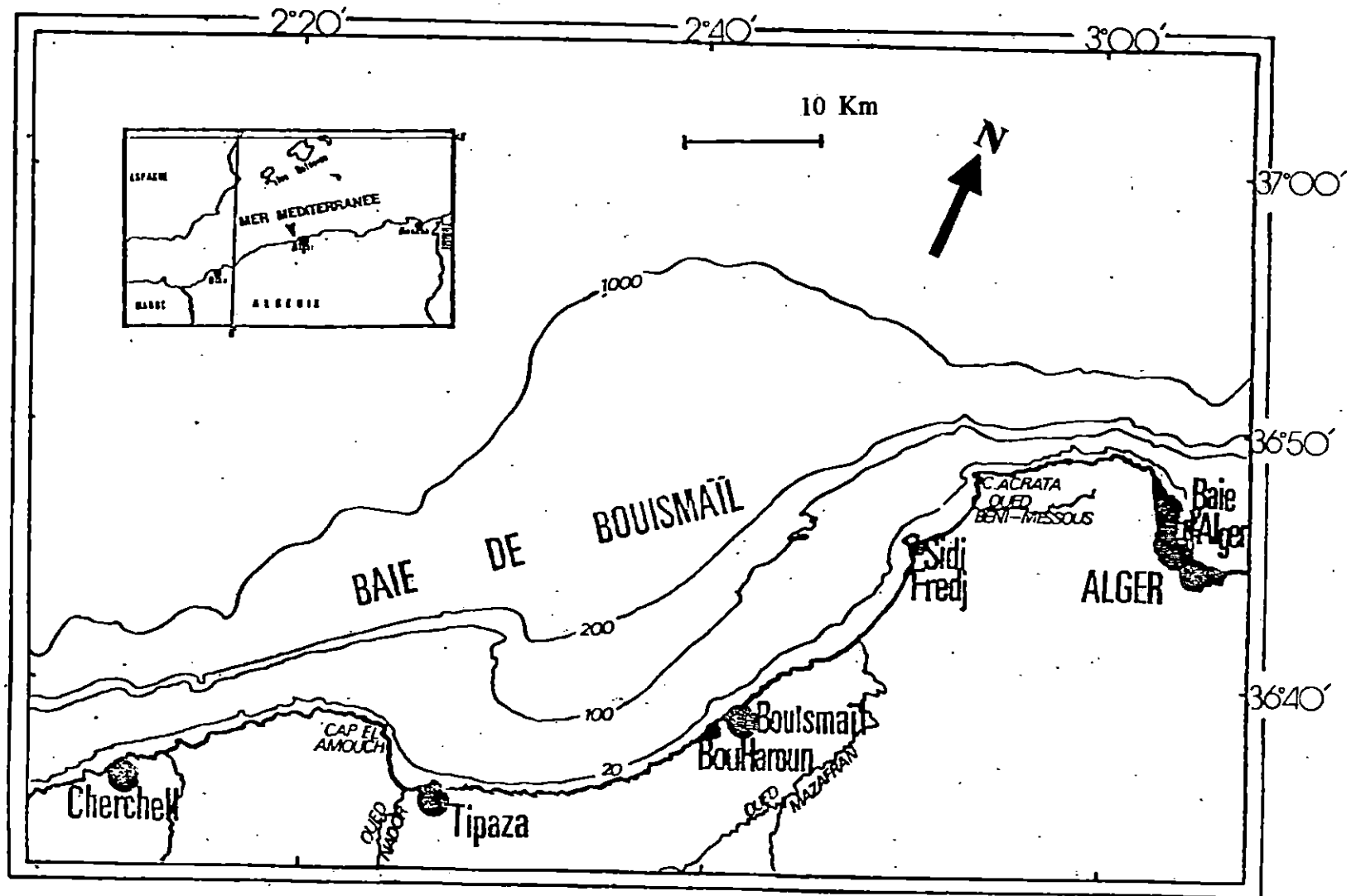


Figure IV.1: Situation géographique de la baie de Bouismaïl (Caulet, 1972)

Tableau IV.1 : Fréquence des ventes (%) selon les directions dominantes dans la Baie de Bouismail

Direction	Périodicité (%)		
	Annuelle	Hivernale	Estivale
NE à Est	17,80	12,20	23,40
NNW	23,30	27,50	19,00
Ouest	08,40	08,50	08,20
SSE	07,50	12,20	03,60
Vent nuls	11,60	06,40	16,80

IV.2.2 Houles

Les houles dominantes dans la baie de Bouismail sont de direction Ouest Nord Ouest et Nord Est. En hiver les houles les plus importantes viennent de l'Ouest et Nord Ouest avec des amplitudes de 2 à 2,5 m.

En période estivale les directions sont Est et Nord Est avec des amplitudes généralement plus faibles de 0,5 à 1 m (Meziane, 1987).

IV.2.3 Courants

Le courant dominant au large de la baie de Bouismail est d'origine Atlantique. Le flux en provenance du détroit de Gibraltar coule le long de la côte algérienne de l'Ouest vers l'Est avec une largeur de 50 Km. Il devient instable, formant des tourbillons ou anticyclones accompagnés du phénomène d'"upwelling" entre 1 et 2° Est (Millot, 1985).

Si la direction du courant Atlantique du large est Ouest-Est, des contre courants locaux en liaison avec les vents dominants induisent dans la baie de Bouismail un courant de direction moyenne Nord Est-Sud Ouest; dont la vitesse varie entre 0,5 et 1 m/s (Meziane, 1987).

IV.3 Sédimentologie

Dans la Baie de Bouismail, les matériaux constituant la couverture sédimentaire comme partout ailleurs proviennent de l'érosion continentale et sous marine ainsi que la production biologique.

La plate forme continentale de la baie est le siège d'une sédimentation fine argileuses due en grande partie aux apports de l'Oued Nador dans la partie Ouest de la baie at aux apports de Mazafran en Est (Leclair , 1972) .

C'est ainsi que Leclair (1972) a mis en évidence la répartition et la nature de la couverture sédimentaire actuelle et récente en baie de Bouismail (Figure IV.2) où il distingue plusieurs types de sédiments :

- * Les sédiments calcaire de deux types : les sables et graviers côtiers qui appartiennent à la frange meuble littorale.
- * Les sédiments siliceux forment une succession de plages le long de la baie.
- * Les sédiments argileux s'étendent sur une grande partie du plateau continental de la baie.

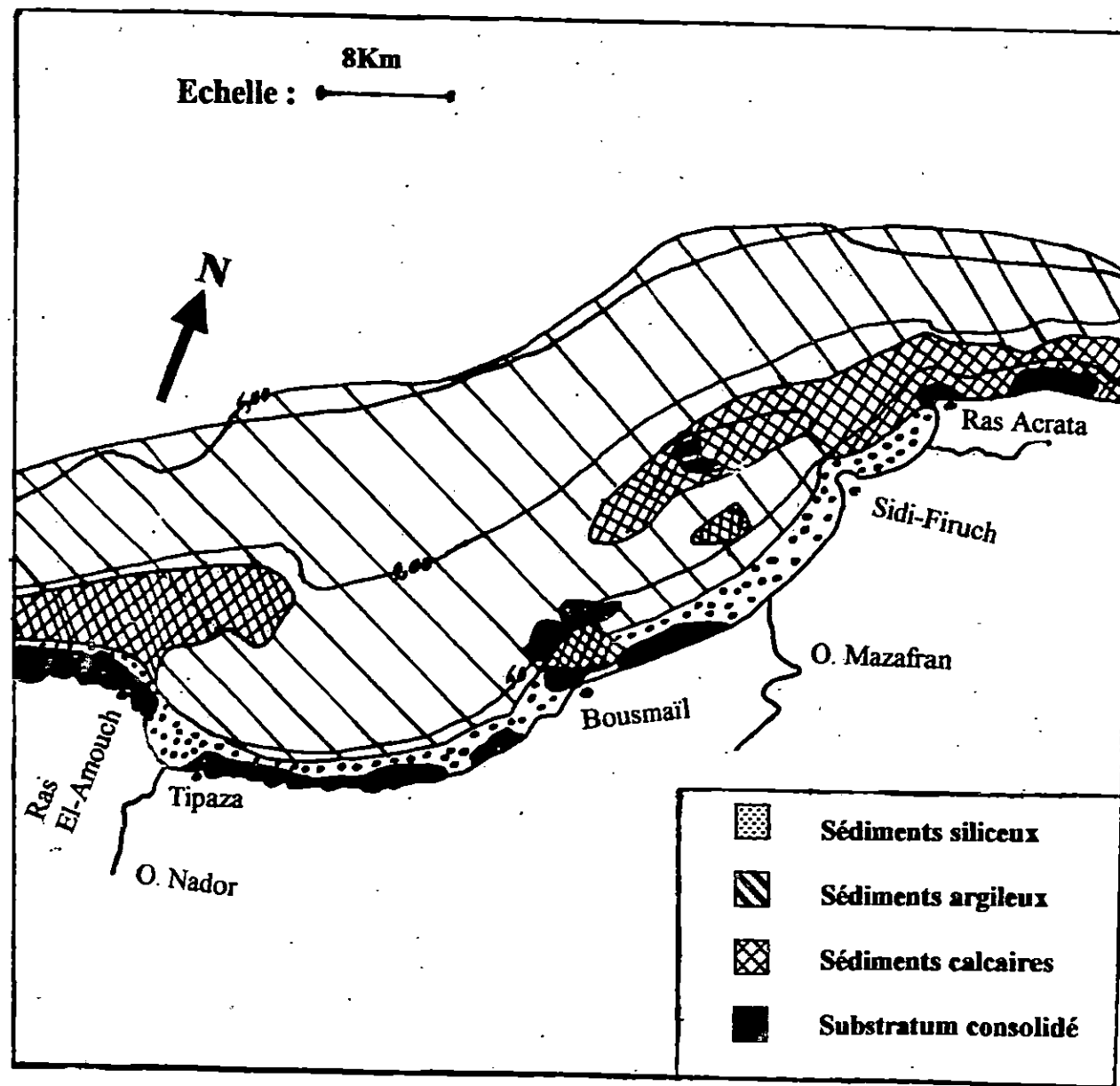


Figure IV.2: Nature et répartition des sédiments dans la baie de Bousmaïl (LECLAIRE, 1972)

Chapitre V :
Campagne d'échantillonnage

La campagne de prélèvement d'échantillons de sédiment dans la baie de Bouismail a été effectuée, du 17 au 24 septembre 1996, à bord du navire océanographique "M.S Ben Yahia" de l'ISMAL, et sous des conditions climatiques et un état d'agitation de la mer favorables. Cette campagne d'échantillonnage comporte un prélèvement le long d'une radiale située à proximité de l'embouchure du Oued Mazafran, d'une part de cinq échantillons de sédiment de surface à des profondeurs comprises entre 19 m et 500 m, et d'autre part une carotte de sédiment à 350 m de profondeur (Figure V.1).

V.1 Prélèvement des échantillons

Lors de cette campagne, la localisation des stations de prélèvement a été réalisée à l'aide d'un G.P.S. Les sédiments de surface ont été prélevés à l'aide d'une bonne preneuse inoxydable de type Van-Veen de section d'impact 0.19m^2 . En outre une carotte de sédiment de 25 cm a été prélevée à l'aide d'un carottier à boîtier de section nominale $20 \times 30\text{cm}^2$. Les schémas des équipements sont donnés dans la Figure V.2.

Il faut noter que le prélèvement de sédiment à la surface de la station 11 n'a pas eu lieu à cause de la nature rocheuse du fond. L'ensemble des informations concernant les stations d'échantillonnage (position, profondeur) sont données dans le Tableau V.1.

V.2 Traitement des échantillons à bord

Les sédiments prélevés aux différentes stations sont de nature vaseuse, à l'exception de la station 09 qui présente un sédiment sable vaseux.

Aussitôt après leur prélèvement, les échantillons de sédiments de surface sont récupérés à l'aide de fines spatules inoxydables dans des sachets en nylon sur lesquels sont inscrites les coordonnées de la station et la masse humide de l'échantillon. En ce qui concerne la carotte de sédiment, on a procédé à un sectionnement en couches de 1 cm d'épaisseur à l'exception de la 2^{ème} et 17^{ème} couches qui ont une épaisseur de 2 cm.

Les sédiments des différentes couches de la carotte sédimentaire sont mis dans des sachets en Nylon, accompagnés de leurs étiquettes sur lesquelles sont mentionnés les coordonnées de la couche, le numéro de la station et la masse de l'échantillon.

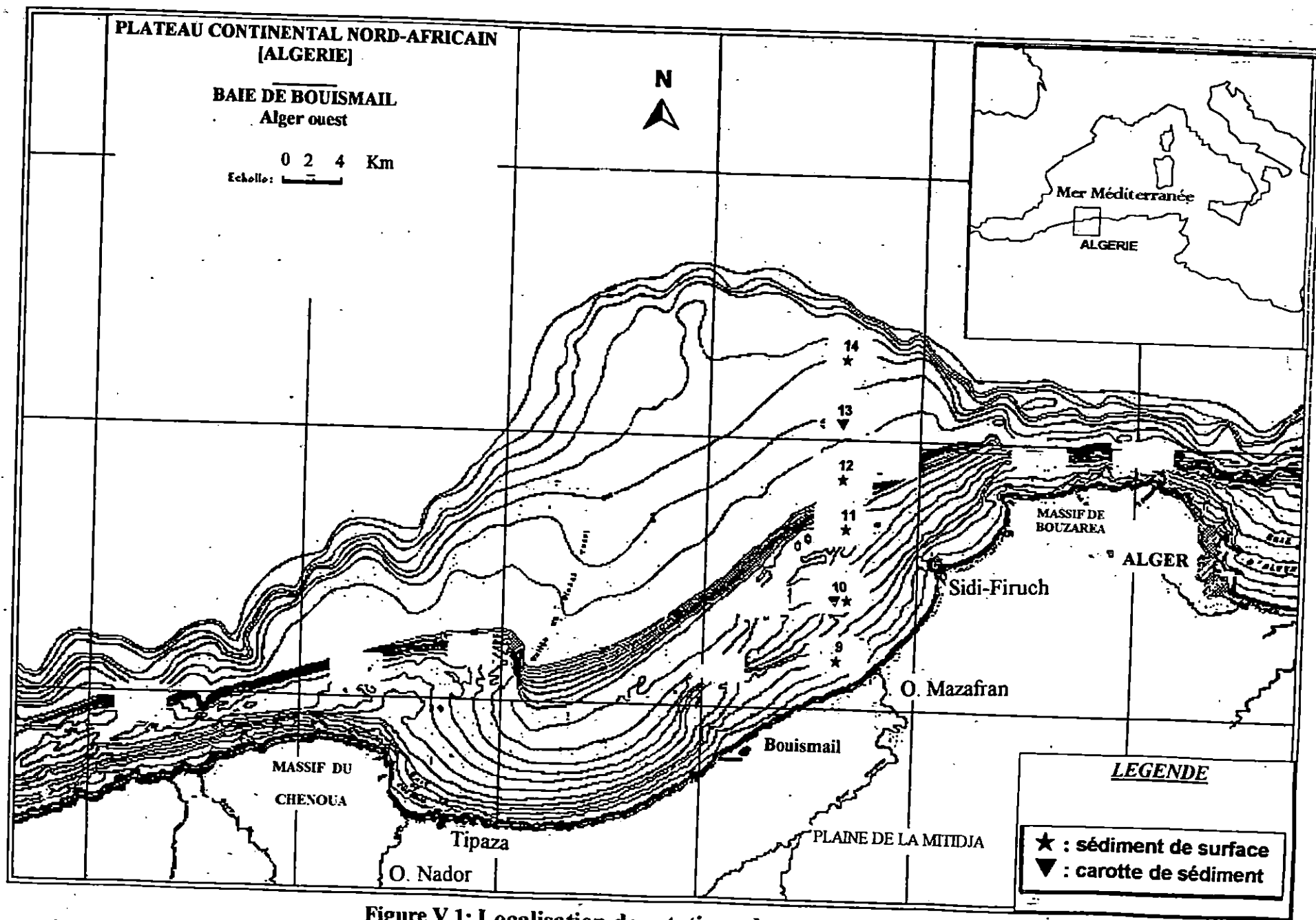
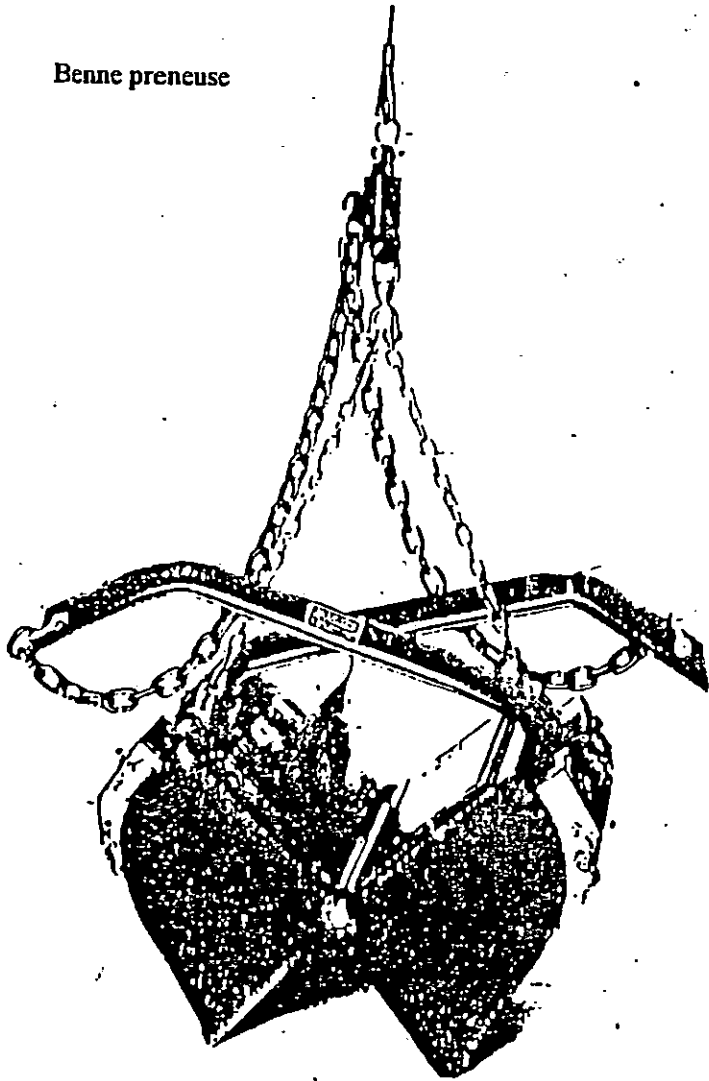


Figure V.1: Localisation des stations de prélèvement (Caulet, 1972)

Benne preneuse



Carottier à boîtier

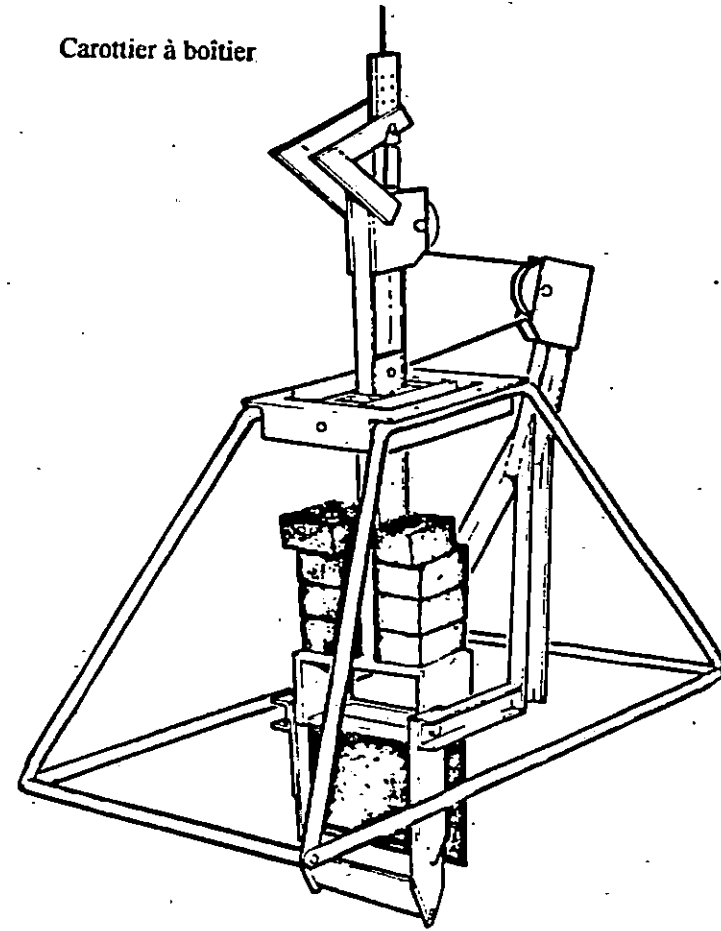


Figure V.2: Schémas des équipement de prélèvement utilisés lors de la campagne

Tableau V.1: Le programme de travail à bord

Station	Date de prélèvement	Latitude	Longitude	Bathymétrie	Opération	Observation
Station n°09	22/09/97	36°.41.9N	0246.0E	19m	Prélèvement d'un échantillon de sédiment superficiel avec une benne preneuse VAN-VEEN	
Station n°10	22/09/97	36°.44.6N	0245.9E	70m	Prélèvement d'un échantillon de sédiment de surface.	
Station n°11	22/09/97	36°.47.3N	02.45.9E	100m	Tentative de prélèvement de sédiment superficiel avec une benne preneuse	Les essais de prélèvement n'ont pas abouti à cause de la présence d'un fond rocheux.
Station n°12	22/09/97	36°.48.2N	02.46.1E	200m	Prélèvement d'un échantillon de sédiment superficiels	
Station n°13	22/09/97	36°.50.9N	02.45.7E	350m	Prélèvement d'une carotte de sédiment de 25 cm avec un carottier type Box-Corer.	
Station n°14	22/09/97	36°.53.4N	02.46.2E	500m	Prélèvement d'un sédiment de surface.	

Chapitre VI :
Conditionnement et analyse des échantillons

Dans ce chapitre, on présentera l'appareillage utilisé ainsi que la méthodologie suivie pour l'analyse radioactive des échantillons de sédiments.

VI. 1. Conditionnement des échantillons

Le conditionnement des échantillons a été effectué au laboratoire d'études d'impact radiologique (LEIR) du centre de radioprotection et de sûreté (CRS) à Alger.

Pour leur préparation au comptage, les échantillons de sédiments subissent un conditionnement, consistant en un séchage à l'étuve à une température de 100° c pendant 48 h, puis un broyage et une homogénéisation à l'aide d'un broyeur homogénéiseur.

Enfin, chaque échantillon broyé est pesé, puis une quantité de 350 à 600 g est mise dans un flacon Marinelli(500cc) accompagné de son étiquette sur laquelle sont mentionnés le poids ainsi que la date de mise en flacon.

Afin que l'équilibre séculaire des chaînes d' ^{238}U et du ^{232}Th soit atteint, les échantillons mis dans les flacons, sont laissés pour une durée de 20 jours avant qu'ils soient analysés par spectrométrie gamma.

VI. 2. Analyse des échantillons

Les échantillons sont comptés en contact avec le détecteur. Les échantillons de sédiment contiennent de la radioactivité α , β et γ . Cependant, l'instrumentation de mesure utilisée, dans notre cas, est équipée d'un détecteur à Germanium hyper pur Ge-HP, qui ne peut détecter que la radioactivité γ .

Cette radioactivité apparaît sous forme d'un ensemble de raies d'énergies (spectre) différentes, situées dans la gamme (40-2000 keV).

Afin d'identifier ces différents raies d'énergie et de quantifier les radionucléides correspondants, on procède à une calibration en énergie et une calibration en efficacité.

VI.3 Description de la chaîne de détection

La chaîne de détection utilisée est constituée d'un détecteur Ge -HP du type coaxial polarisé à 2500 V moyennant un générateur de haute tension. Le détecteur, logé dans une enceinte blindée et refroidi avec une bouteille contenant de l'azote liquide. L'électronique associée est composée d'un préamplificateur, un amplificateur et une carte d'interface contenant un convertisseur analogique digital (ADC) et un analyseur multi-canal (MCA). Le schéma synoptique est représenté dans la Figure VI. 1.

Lorsqu'un rayon gamma passe à travers le détecteur, il y a ionisation et création de paire 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 répartit les impulsions suivant leur amplitude en un grand nombre de classe et permet de dresser des histogrammes d'amplitude.

Finalement, l'MCA mémorise les impulsions digitalisées dans les canaux différents en fonction de leurs amplitudes. La lecture du nombre d'impulsion enregistrée par un logiciel de control, qui permet de visualiser le spectre en temps réel.

VI.3.1. Structure et rôle du blindage :

Le blindage a pour rôle de réduire le bruit de fond dû aux rayonnements cosmiques d'une part, et des traces de la radioactivité contenue dans les matériaux de structure l'air ambiant, d'autre part. Les matériaux choisis pour le blindage sont généralement de haute densité. Dans notre cas, l'enceinte constituée d'une barrière en plomb d'une épaisseur de 10 cm, recouverte d'une couche de cuivre de 1 cm d'épaisseur. La couche de cuivre permet, quand à elle de réduire les rayons X de fluorescence générés par le plomb.

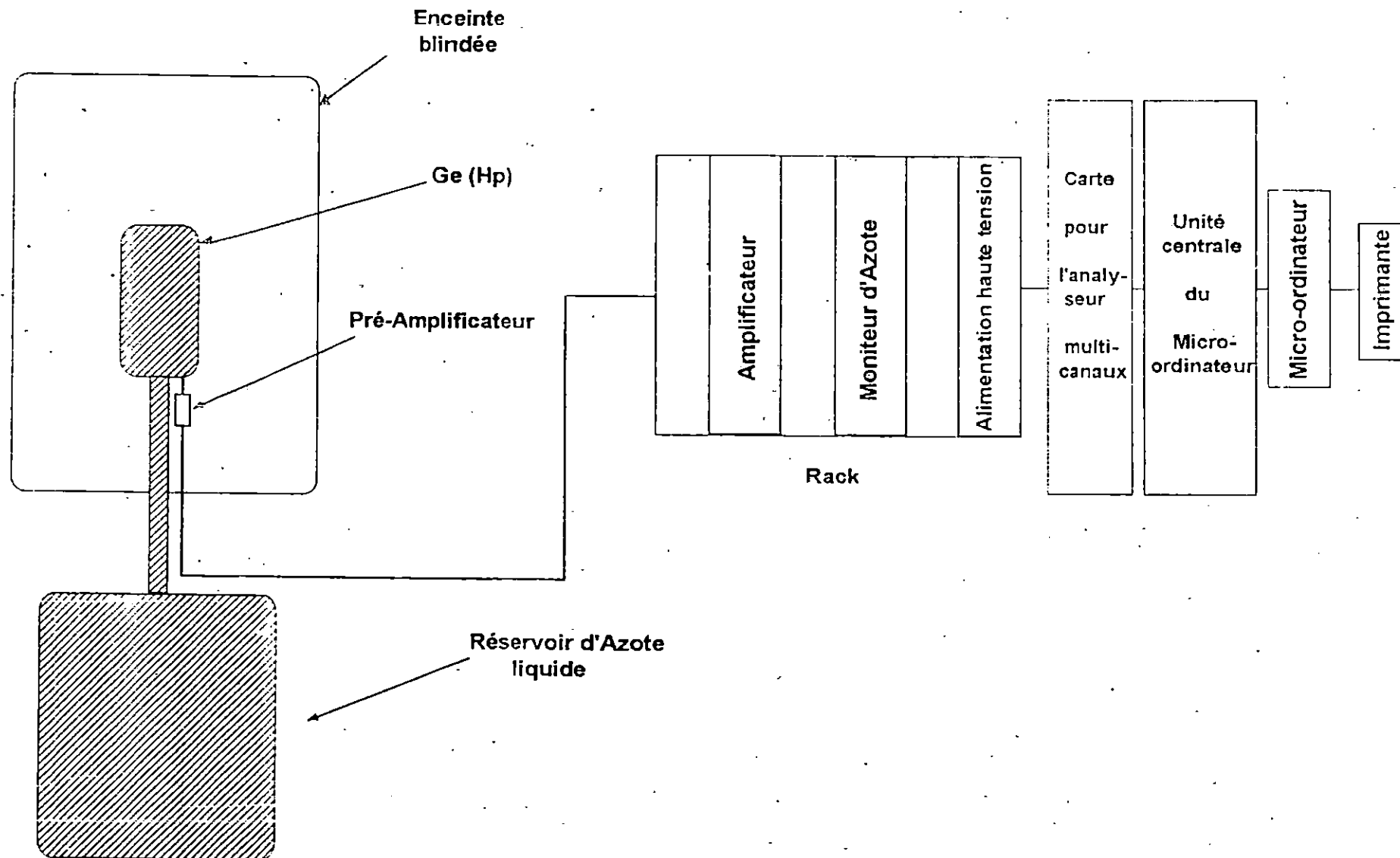


Figure VI.1: Schéma de la chaîne de détection utilisée.

VI.4 Calibration en énergie

Un radionucléide est, en général, directement identifié à travers la reconnaissance, dans le spectre énergétique, de ses pics caractéristiques d'émission gamma. Au préalable, une opération, de calibration en énergie, doit cependant être entreprise pour établir une relation entre l'énergie du rayonnement et le numéro de canal où sont enregistrées les impulsions correspondantes.

Dans notre cas, cette calibration a été réalisée au moyen de trois sources étalons.

L'énergie des pics et le numéro de canal correspondant sont donnés dans le Tableau VI.1

Tableau VI.1 : Calibration en énergie du détecteur Ge-HP.

Radionucléide	Energie(keV)	N° de canal
Cs-137	661,6	1367
Am-241	59,5	98
Co-60	1117,24	2446
	1332,5	2782

A partir de ces quatre points expérimentaux, on procède au tracé de la droite de calibration en énergie par la méthode de la régression linéaire au sens des moindres carrés (Figure VI.2).

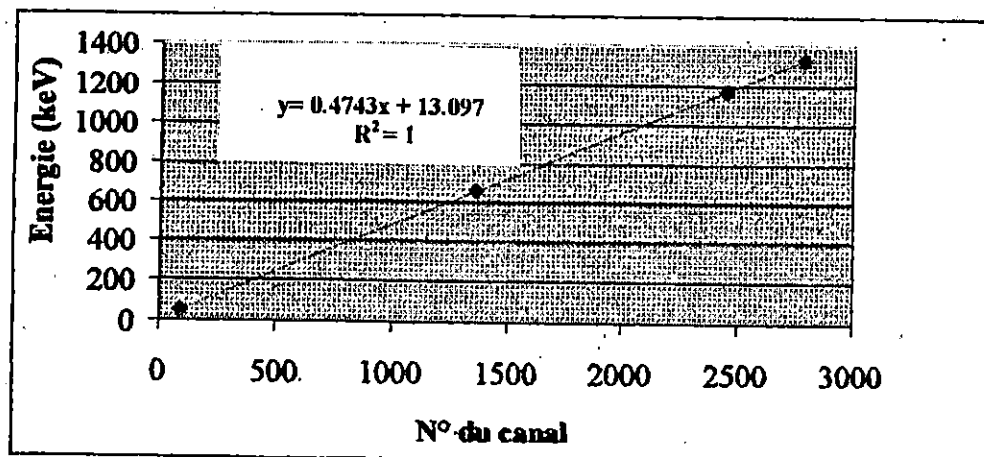


Figure VI.2: Droite de calibration en énergie

VI. 5 Calibration en efficacité

La détermination de l'activité des radionucléides contenus dans les échantillons de sédiment nécessite la mesure ou le calcul du rendement de détection. Ce dernier dépend de la géométrie de comptage, de la configuration de la source (échantillon), du détecteur et de l'énergie du rayonnement (Bennadji, 1987).

En ce qui concerne la géométrie de comptage on a opté pour un flacon type 500cc Marinelli représenté dans la figure VI.3.

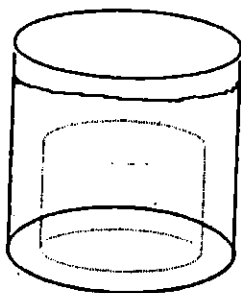


Figure VI.3 : Représentation schématique de la géométrie de comptage

La détermination de la courbe de rendement dans notre travail a consisté en ce qui suit:

- Comptage d'un échantillon standard (un échantillon de sédiment de référence A.I.E.A dans lequel est injecté une solution radioactive d'¹⁵²Eu d'activité connue).
- Détermination de l'efficacité de détection aux énergies spécifiques de l'¹⁵²Eu et ceci à partir du spectre mesuré et des données de référence de l'échantillon standard utilisé. Le calcul de l'efficacité aux différentes énergies d'intérêts est effectué à partir de l'expression :

$$\varepsilon = \frac{N}{A I t} \quad (\text{VI.1})$$

où

t: temps de comptage ;

A : activité de l'échantillon standard corrigée à la date de comptage ;

I : Probabilité d'émission de l'énergie E donnée par les tables ;

N : La surface nette du pic correspondant à l'énergie E, déduction faite du bruit de fond et de la contribution des photons d'énergie supérieure.

La détermination, par mesure expérimentale de la courbe de calibration de l'efficacité est entaché d'une incertitude.

Le calcul d'incertitude est basé sur la loi de propagation d'erreurs. L'expression générale

donnant l'erreur sur l'efficacité est :

$$\sigma_{\hat{\epsilon}} = \epsilon \sqrt{\left(\frac{\sigma N}{N}\right)^2 + \left(\frac{\sigma A}{A}\right)^2 + \left(\frac{\sigma t}{t}\right)^2 + \left(\frac{\sigma I}{I}\right)^2} \quad (\text{VI.2})$$

où $\frac{\sigma N}{N}$ est l'erreur relative sur le comptage ;

$\frac{\sigma A}{A}$ est l'erreur relative sur l'activité donnée par le fournisseur (2%) ;

$\frac{\sigma t}{t}$ l'erreur relative sur le temps (négligeable) ;

$\frac{\sigma I}{I}$ l'erreur sur la probabilité d'émission (négligeable).

Les valeurs de l'efficacité et de l'erreur sur l'efficacité pour leurs énergies correspondantes sont données par le tableau VI.2.

Tableau VI.2: Valeurs ponctuelles de l'efficacité aux énergies de ^{152}Eu .

Energie (kev)	Efficacité (%)
121.78	3.76±0.143
244.69	2.56±0.100
344.27	2.06±0.080
411.11	1.63±0.078
443.91	1.57±0.071
778.89	0.98±0.040
963.38	0.83±0.039
1085.78	0.82±0.034
1112.02	0.80±0.013
1407.95	0.76±0.024

La phase suivante consiste à construire une courbe de réponse en efficacité ainsi que la courbe d'incertitude associée, par interpolation des données du tableau précédent au sens des moindres carrés (Figures VI.4 et VI.5).

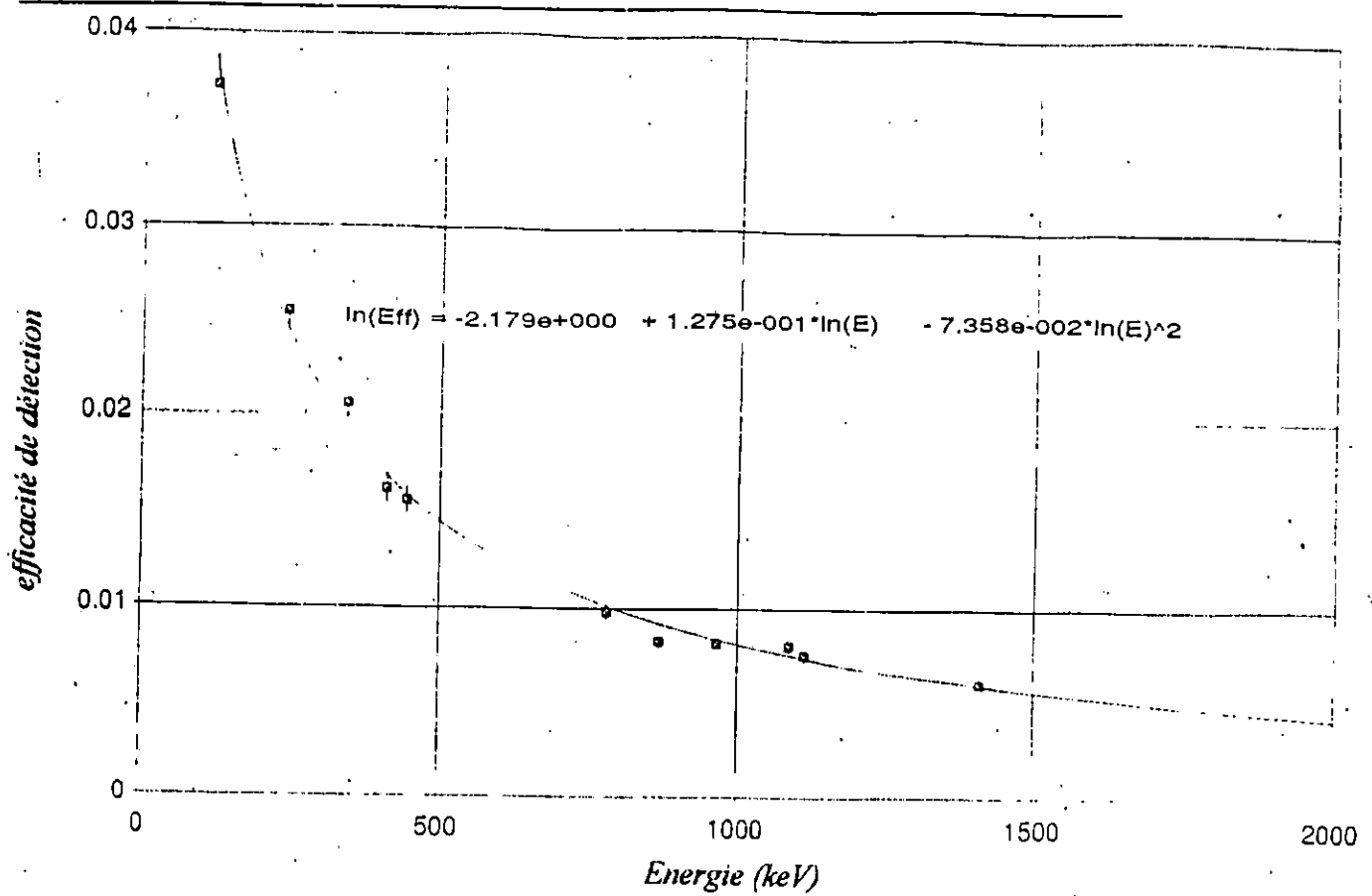


Figure VI.4: Courbe de calibration en efficacité de la chaîne de spectrométrie gamma, pour la géométrie de comptage utilisée (flacon 500cc Marinelli)

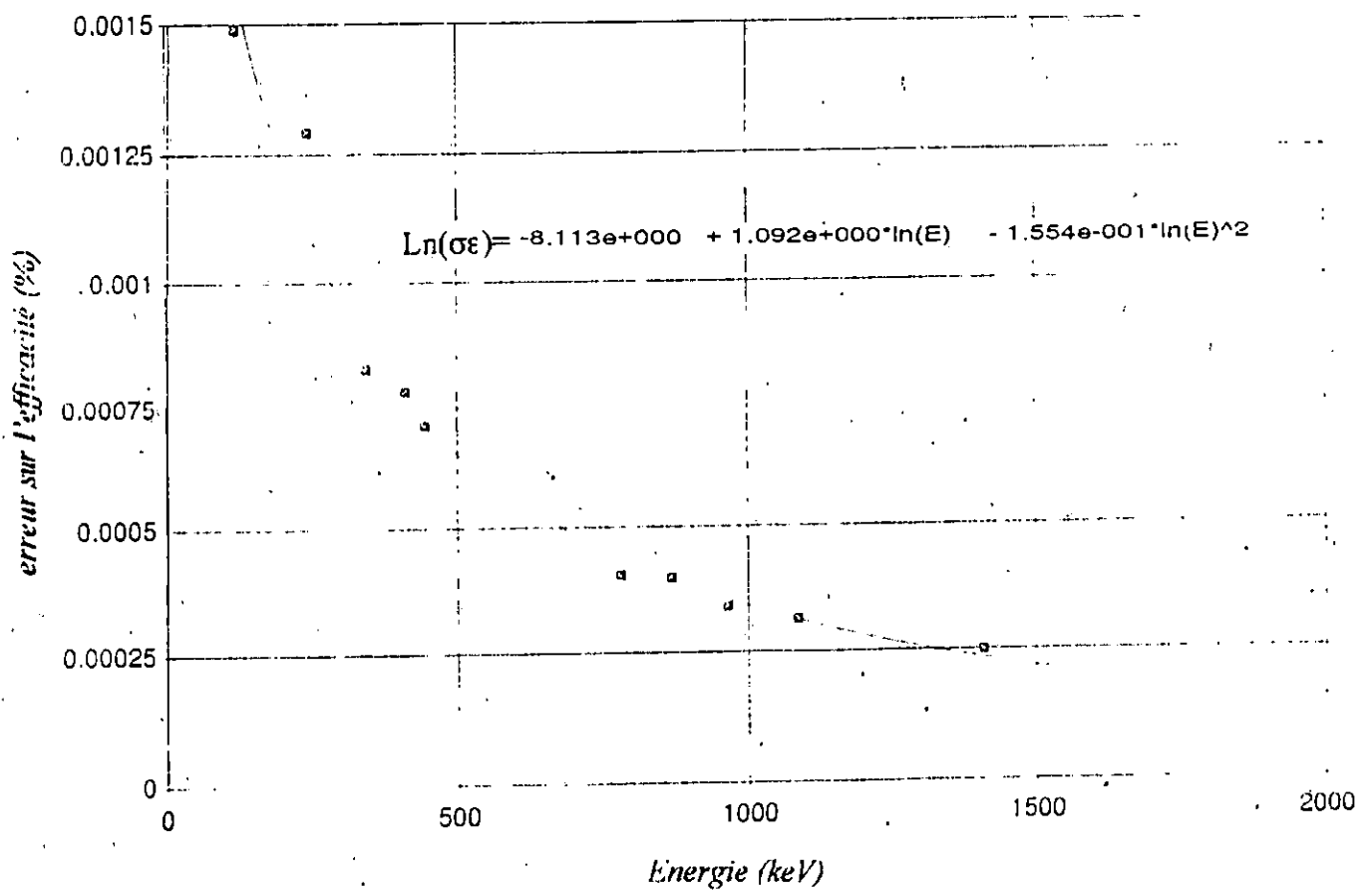


Figure VI.5: Courbe d'erreur sur l'efficacité de la chaîne de spectrométrie gamma, pour la géométrie de comptage utilisée (flacon 500cc Marinelli)

VI.6 Comptage du bruit de fond

Avant de procéder au comptage de nos échantillons, un comptage du flacon à vide a été effectué.

Le comptage à vide est appelé comptage du bruit de fond. Ce comptage permet d'évaluer la radioactivité due aux rayonnements cosmiques, au milieu ambiant (la radioactivité présente dans le laboratoire) et au détecteur lui même (radioactivité des matériaux de structure). Un spectre du bruit de fond a été acquis pendant un temps de 48 heures.

La Figure VI.6 montre l'importance du bruit de fond par rapport au spectre d'un échantillon.

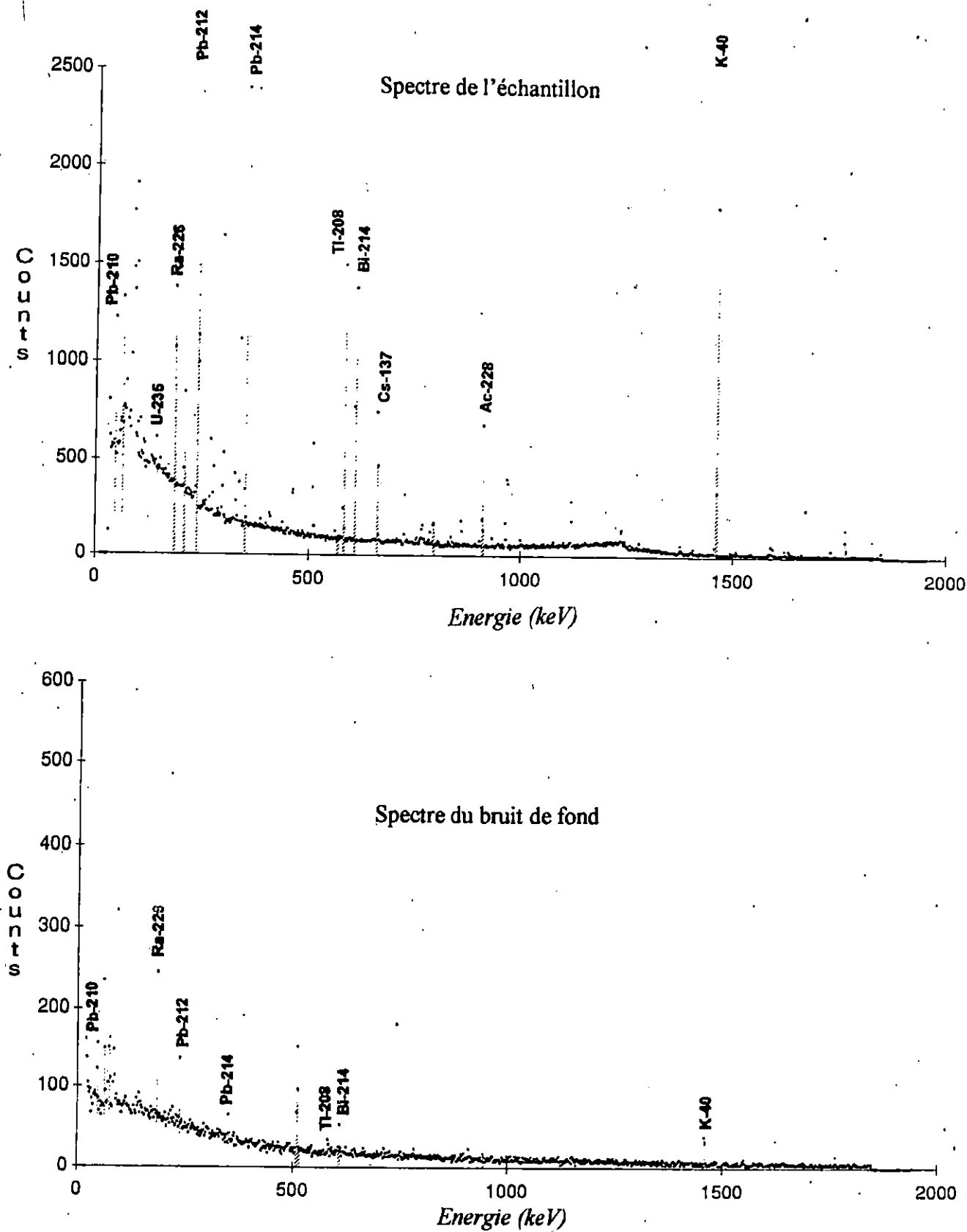


Figure VL6: Comparaison du spectre d'un échantillon au bruit de fond (pour un même temps de comptage : 24h)

VI.7 Analyse du spectre d'énergie

Comme il a été signalé précédemment, les résultats d'analyse des échantillons, analysés dans les mêmes conditions de géométrie et de configuration, sont donnés sous forme d'un spectre.

Pour calculer les activités des radionucléides d'intérêt, nous avons procédé à l'identification de l'ensemble des pics apparents.

La surface de ces pics peut être déterminée directement, par marquage à partir de la base, de part et d'autre du pic considéré en vérifiant que l'excentricité par rapport à la forme Gaussienne est la plus faible.

Contrairement aux autres radionucléides dont les pics gamma sont suffisamment séparés les uns des autres, le ^{226}Ra (186.2 keV) et l' ^{235}U (185.7 keV) présentent une interférence. Le chevauchement des deux pics en question est dû au fait que l'écart entre les deux énergies (0.5 keV) est inférieure au pouvoir de résolution du détecteur dans cette gamme d'énergie (~ 1 keV).

De ce fait, la détermination de l'activité du ^{226}Ra fait appel à un calcul dont la méthode est expliquée en annexe.

VI.8 Calcul des concentrations d'activité

Le calcul des concentrations d'activité des radionucléides identifiés à partir du spectre d'énergie, se fait par la formule suivante :

$$A(\text{Bq/Kg}) = \frac{N}{\epsilon \cdot I \cdot t \cdot m} \quad (\text{VI.3})$$

où :

N : est la surface nette du pic photoélectrique à l'énergie E du radionucléide considéré, déduction faite du bruit de fond et de la contribution des photons d'énergie supérieure : $N = N_{\text{ech}} - N_{\text{BF}}$ (VI.4)

ϵ : l'efficacité de détection à l'énergie considérée, calculée à partir de l'équation de la courbe de calibration.

M : la masse analysée de l'échantillon (kg)

t : le temps de comptage (s)

I : la probabilité d'émission du pic considéré

L'erreur sur l'activité est calculée en appliquant la loi de propagation d'erreurs. La relation

finale obtenue est la suivante :

$$\sigma A = A \sqrt{\frac{N_{ech} + N_{BF}}{(N_{ech} - N_{BF})^2} + \left(\frac{\sigma E}{E}\right)^2} \quad (VI.5)$$

VI.8.1. Détermination du ^{226}Ra :

Dans notre travail, le ^{226}Ra a été déterminé par deux différentes approches. La première consiste à calculer l'activité directement à partir de son pic gamma à 186.2 keV, moyennant une correction d'interférence avec ^{235}U . La deuxième approche est basée sur la détermination de l'activité de deux de ses descendants (^{214}Bi et ^{214}Pb) dans des conditions d'équilibre séculaire. Vues leurs courtes périodes radioactives (19.7 min, 26.8 min), la seule origine possible de ces deux radionucléides est la décroissance in situ de leur père effectif ^{226}Ra , présent dans le sédiment, à travers une série de radioéléments intermédiaires, de courtes périodes, à l'exception du ^{222}Rn qui présente une demi-vie relativement longue (3,9 jours).

Par conséquent, l'activité du ^{214}Pb et celle du ^{214}Bi sont contrôlées principalement par le temps de croissance du ^{222}Rn , et en pratique on peut considérer que l'équilibre séculaire est atteint au bout d'un temps égal à cinq fois la période du ^{222}Rn , soit 19 jours depuis le dernier remaniement de l'échantillon. Dans notre cas, les échantillons ont été mesurés après plus de 20 jours depuis leur mise dans les flacons, afin de permettre le rétablissement de l'équilibre, rompu lors des opérations de séchage et de broyage.

Les activités du ^{226}Ra déterminées par ces deux méthodes seront présentées et discutées au Chapitre VII.

VI.8.2. Détermination du ^{228}Ra

Le ^{228}Ra (demi-vie 6.7 ans) n'est pas un émetteur gamma, mais sa décroissance donne naissance à ^{228}Ac (demi-vie 6.13h), qui est un émetteur gamma à l'énergie 911 keV. Dans nos conditions d'analyse, ces deux radionucléides peuvent être considérés en équilibre séculaire. Par conséquent l'activité du ^{228}Ra est celle de son descendant ^{228}Ac .

VI.8.3. Détermination du ^{228}Th

Au même titre que le ^{228}Ra , le ^{228}Th (demi-vie 1.9ans) est un émetteur alpha n'ayant aucun pic gamma d'énergie et d'intensité détectables. Sa désintégration conduit, à travers une série de radioéléments intermédiaires de courtes périodes, à la formation du ^{212}Pb (demi-vie 10.6h). Ce dernier émet des photons gamma à 351.9 keV. Pour les mêmes raisons évoquées précédemment, l'activité déterminée du ^{212}Pb constitue une mesure du ^{228}Th .

VI.8.4. Détermination de la MDA

L'activité minimale détectable (MDA) est la valeur de concentration au dessous de laquelle les valeurs d'activité ne seront pas retenues. Elle est déterminée à partir de la formule suivante :

$$\text{MDA} = 4.66 \frac{\sqrt{N_{\text{BF}}}}{\varepsilon \cdot I \cdot t \cdot m} \quad (\text{VI.6})$$

L'analyse par spectrométrie gamma des échantillons des différentes couches de la carotte sédimentaire ainsi que des échantillons de sédiment de surface, a révélé la présence de radionucléides naturels, d'une part, et d'une radioactivité artificielle, d'autre part.

Les radionucléides naturels identifiés sont le ^{40}K et des descendants des trois familles radioactives, à savoir :

- ^{226}Ra , ^{214}Pb (descendant du ^{226}Ra), ^{214}Bi (descendant du ^{226}Ra) et ^{210}Pb pour la famille de l'uranium ;
- ^{228}Ac (descendant du ^{228}Ra), ^{212}Pb et ^{208}Tl (descendants du ^{228}Th), pour la famille du thorium ;
- et, enfin, le chef de file de la famille de l'actinium (^{235}U).

En plus de ces radioéléments naturels, l'analyse a révélé également la présence d'un radionucléide artificiel dans tous les échantillons. Il s'agit du ^{137}Cs .

Après cette étape d'identification, on a procédé à l'évaluation des concentrations d'activité en Bq/Kg sec des différents radionucléides identifiés, à l'exception du ^{210}Pb qui a été déterminé en termes de taux de comptage par unité de masse (cps/g).

Dans ce chapitre, on commencera d'abord par une discussion concernant la détermination du ^{226}Ra , avant de présenter les résultats obtenus pour l'ensemble des radionucléides. Ensuite, on s'intéressera essentiellement à la répartition de la radioactivité naturelle et artificielle, aussi bien le long de la radiale qu'en profondeur dans la carotte de sédiment.

VII. 1. Détermination du ^{226}Ra – comparaison des deux méthodes

Comme nous l'avons présenté au Chapitre VI, le ^{226}Ra a été déterminé par deux différentes approches. Les résultats correspondants sont récapitulés dans les Tableaux VII. 1 et VII. 2, respectivement pour les sédiments de surface et les sédiments de la carotte.

Tableau VII. 1 : Concentrations du ^{226}Ra dans les sédiments de surface

Station	^{226}Ra (1)	^{226}Ra (2)	^{226}Ra (2)/ ^{226}Ra (1)
09	16,73 ± 0,96	17,32 ± 0,88	1.04
10	30,72 ± 1,77	19,35 ± 0,98	0.63
12	26,56 ± 1,53	22,48 ± 1,15	0.85
14	30,24 ± 1,74	26,15 ± 1,34	0.86

(1): calculé à partir du pic 186 keV du ^{226}Ra ;

(2): calculé à partir du ^{214}Bi et ^{214}Pb .

Tableau VII. 2 : Concentrations du ^{226}Ra dans la carotte sédimentaire

Profondeur (cm)	^{226}Ra (1)	^{226}Ra (2),	^{226}Ra (2)/ ^{226}Ra (1)
05	48,31 ± 2,78	22,87 ± 1,46	0.47
2	41,42 ± 2,38	24,10 ± 1,48	0.58
3,5	40,81 ± 2,35	24,03 ± 1,40	0.59
4,5	50,41 ± 2,90	25,19 ± 1,51	0.50
5,5	26,31 ± 1,51	21,80 ± 1,47	0.83
6,5	31,35 ± 1,80	24,55 ± 1,47	0.78
7,5	30,51 ± 1,75	23,93 ± 1,36	0.78
8,5	36,04 ± 2,07	22,31 ± 1,44	0.62
9,5	47,52 ± 2,73	22,51 ± 1,41	0.47
10,5	46,81 ± 2,69	22,96 ± 1,52	0.49
11,5	28,23 ± 1,62	22,73 ± 1,44	0.81
12,5	34,66 ± 1,99	22,00 ± 1,44	0.63
13,5	27,10 ± 1,56	21,98 ± 1,45	0.81
14,5	29,99 ± 1,72	21,42 ± 1,45	0.71
15,5	34,90 ± 2,07	22,96 ± 1,48	0.66
16,5	41,72 ± 2,40	24,47 ± 1,53	0.59
18	27,15 ± 1,56	23,43 ± 1,65	0.86

(1) : calculé à partir du pic 186 keV du ^{226}Ra ;

(2) : calculé à partir du ^{214}Bi et ^{214}Pb .

D'une manière générale, nous constatons que :

- Les valeurs déterminées à partir du pic 186 keV présentent une grande variation d'un échantillon à un autre.
- Les valeurs obtenues à partir de la moyenne du ^{214}Pb et ^{214}Bi sont presque similaires, pour l'ensemble des échantillons, en tenant compte de l'incertitude sur l'activité.
- L'écart entre les valeurs calculées à partir du pic du 186 keV et celles obtenues par la moyenne du ^{214}Pb et ^{214}Bi est important (parfois supérieur à 50 %).

Dans ce travail, les activités retenues pour le ^{226}Ra sont celles obtenues de la moyenne de ses descendants, ^{214}Pb et ^{214}Bi . Les raisons ayant motivé notre choix sont les suivantes.

- Les pics gamma de ces deux radionucléides (609,5 keV pour le ^{214}Bi et 351,9 keV pour le ^{214}Pb) correspondent à la gamme d'énergie où les résultats d'analyse par spectrométrie gamma, sont plus fiables. Ceci est lié à deux facteurs. Premièrement, l'efficacité de détection est connue avec plus de précision, et deuxièmement, le niveau du bruit de fond est à la fois plus bas et plus stable dans le domaine des hautes énergies.
- Contrairement au ^{226}Ra , les pics du ^{214}Bi et ^{214}Pb sont largement résolus et ne présentent aucune interférence avec d'autres pics.
- Les résultats concernant le profil vertical du ^{226}Ra dans les sédiments marins, tels que reportés par plusieurs auteurs (Smith et al, 1986; Cochran, 1985 et Robinson et Edgington, 1976) ne présentent aucune variation avec la profondeur. Ce fait plaide en faveur des résultats du ^{226}Ra obtenus par la deuxième approche, plutôt que les valeurs calculées sur la base du 186 keV, du fait que celles-ci présentent une plage de fluctuation allant de 25 à 50 Bq/Kg.

A noter que la méthode retenue dans ce travail (détermination de ^{226}Ra à partir de ses deux descendant ^{214}Bi et ^{214}Pb) a été adoptée par plusieurs auteurs (Cundy et Croudace, 1996; DeMaster et al, 1991 ; Gheddou et al., 1998 et; Smith et al, 1997).

VII. 2. Niveaux de la radioactivité dans les sédiments

D'après les résultats des Tableaux VII.3 et VII 4, récapitulant les concentrations d'activité des différents radionucléides identifiés, nous constatons que :

- les concentrations des radionucléides dans les sédiments de surface des différentes stations varient entre 17 et 26 Bq/Kg sec pour ceux de la famille de l'Uranium;
- celles des radionucléides de la famille du Thorium varient entre 18 et 34 Bq / Kg sec; entre 0.63 et 2 Bq/Kg sec pour ^{235}U ;
- et enfin les concentrations du ^{40}K varient entre 312 et 613 Bq/Kg sec.

De tous radionucléides identifiés, Le ^{40}K présente les activités les plus élevées et confirme sa contribution à 90% de l'activité de l'eau de mer (Noureddine, 1987):

Les concentrations du ^{137}Cs mesurées dans les sédiments de surface varient entre 0,9 et 11 Bq/Kg sec (Tableau VII. 3), et entre 6 et 0,1 Bq/Kg sec dans la carotte

sédimentaire (Tableau VII. 4).

Par ailleurs les activités des radionucléides d'intérêt, dans les différentes couches de la carotte sédimentaire, varient comme suit:

- de 21 à 26 Bq/Kg sec pour le ^{226}Ra ;
 - de 22 à 35 Bq/Kg sec pour la famille du Thorium;
 - de 0.63 à 2.5 Bq/Kg sec pour l' ^{235}U ;
 - de 568 à 633 Bq/Kg sec pour le ^{40}K ;
- et enfin de 0.11 à 6.29 Bq/Kg sec pour le ^{137}Cs .

VII.2. Répartition radiale des radionucléides

VII.2.1. Radioéléments naturels:

La répartition radiale de certains radionucléides naturels représentatifs est illustrée par les Figures VII.1. Les valeurs de concentration des différents radionucléides d'intérêt dans les sédiments de surface de la cote vers le large, présentent des variations d'un radionucléide à un autre. Cette différence serait liée essentiellement au comportement physico-chimique de ces radionucléides, aussi bien dans la colonne d'eau que dans le sédiment, et aux conditions du site (abondance des matières en suspension et importance de l'hydrodynamisme).

VII. 2.1.1 Radium 228- Thorium 228

Les concentrations du ^{228}Th le long de la radiale augmentent de la cote vers le large, pour enfin se stabiliser à partir de la station 12 (200m de profondeur).

Par contre, les concentrations du ^{228}Ra présentent la plus faible valeur au de la première station, les valeurs moyennes et constantes au niveau des stations (10,12 et 13) et la valeur maximale au niveau de la dernière station.

Cette distribution de ces deux radionucléides serait étroitement liée à leurs comportement dans le milieu marin.

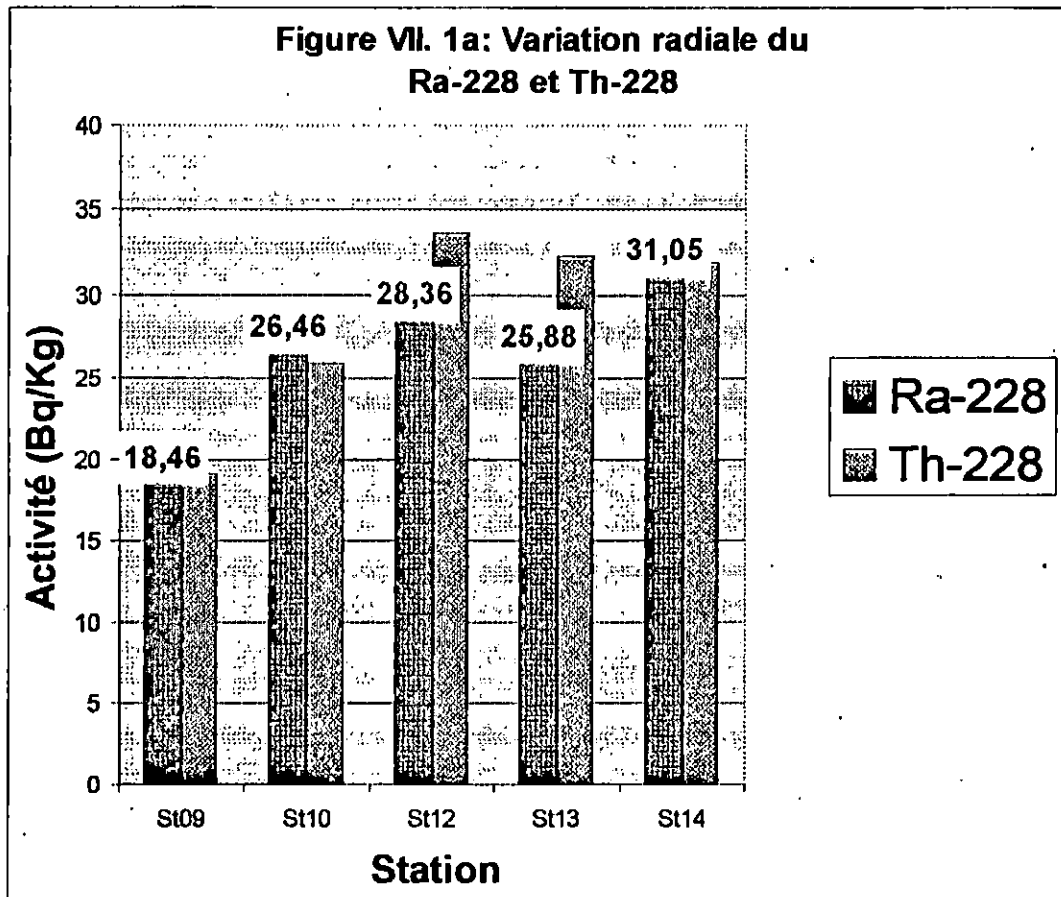
En effet, le ^{226}Ra s'échappe du sédiment vers la colonne d'eau à travers les pores interstitiels. Cette fraction du ^{228}Ra rejoint le sédiment sous forme de ^{228}Th en excès. (à vérifier)
Cet apport du ^{228}Ra vers la colonne d'eau serait favorisé par les courants de fond. Cette thèse pourrait être confirmée par les concentrations du ^{228}Th , qui présentent des valeurs plus proches, vue l'incertitude sur l'activité, au delà de la zone perturbée (Figure VII.1b).

Tableau VII.3: Concentration des radionucléides naturels et du ^{137}Cs dans les sédiments de surface

Station	Ra-226 (Bq/Kg sec)	Ac-228 (Ra-228) (Bq/Kg sec)	Pb-212 (Th-228) (Bq/Kg sec)	K-40 (Bq/Kg sec)	Pb-210 (10^{-5} cps/g sec)	Cs-137 (Bq/Kg sec)	U-235 (Bq/Kg sec)
09	17,32 ± 0.88	18.46±0.94	19.17±0.87	311.70±14.64	<i>0.08150.00314</i>	0.88±0.04	1.42±0.34
10	19,35 ± 0.98	26.46±1.35	25.86± 1.17	447.30±21.03	<i>0.69±0.051</i>	3.28±0.13	1.83±0.16
12	22,48 ± 1.15	28.36±1.45	33.65± 1.53	590.36±24.70	<i>5.73±0.151</i>	10.96±0.44	1.99±0.25
13	22,87 ± 1.26	25.88±1.32	32.25± 1.47	580.61±23.40	<i>3.51±1.22</i>	5.75±0.23	0.63±0.13
14	26,15 ± 1.34	31.05±1.58	31.87± 1.45	613.45±25.51	<i>3.39±0.11</i>	5.82±0.23	0.99±0.17

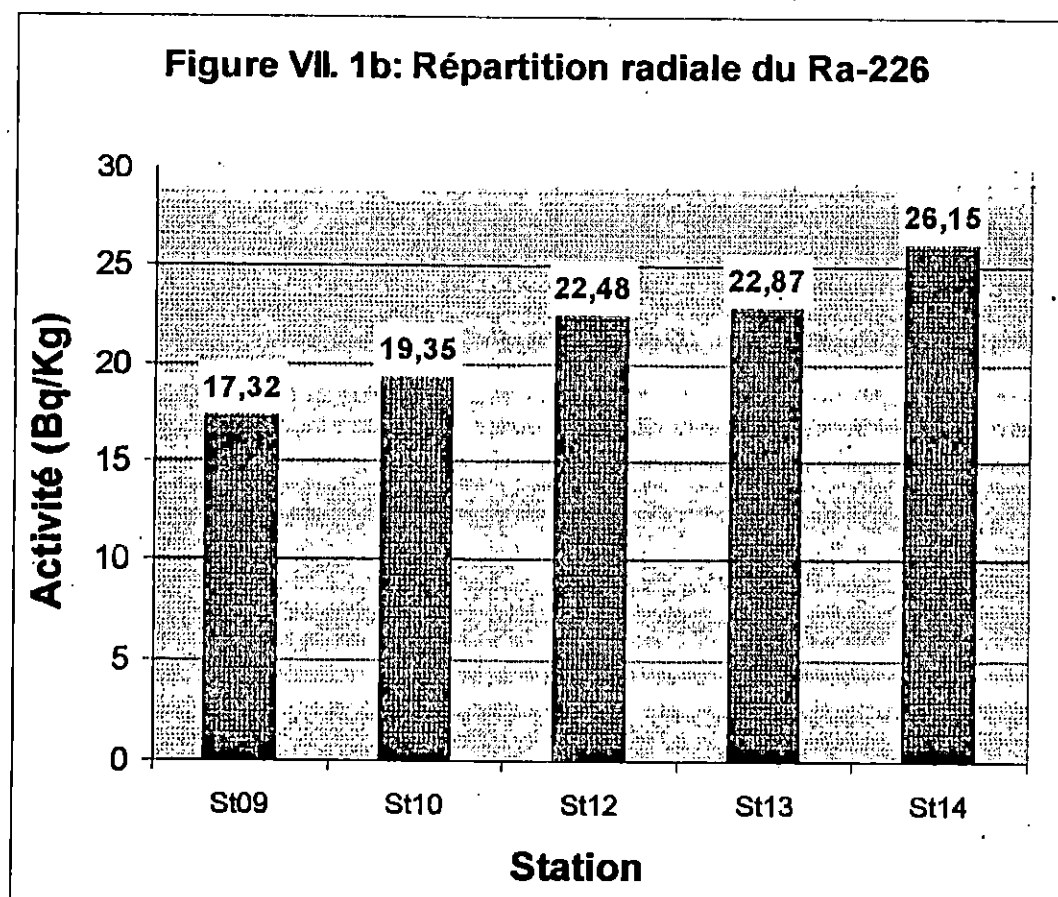
Tableau VII.4: Concentration des radionucléides naturel et du ^{137}Cs dans la carotte sédimentaire

Couche	Profondeur moyenne (cm)	Densité (g/cm^3)	Ra-226 (Bq/Kg sec)	Ac-228 (Ra-228) (Bq/Kg sec)	Pb-212 (Th-228) (Bq/Kg sec)	K-40 (Bq/Kg sec)	Pb-210 (10^{-5} cps/g sec)	Cs-137 (Bq/Kg sec)	U-235 (Bq/Kg sec)
1	0.5	1.18	22.87 ± 1.17	25.88 ± 1.32	32.25 ± 1.47	580.61 ± 23.23	3.51 ± 1.22	5.75 ± 0.23	0.63 ± 0.06
2	2	0.54	24.10 ± 1.23	26.34 ± 1.35	32.71 ± 1.49	582.80 ± 23.32	3.20 ± 1.15	6.29 ± 0.25	1.63 ± 0.17
3	3.5	0.52	24.03 ± 1.2	24.83 ± 1.27	27.85 ± 1.27	602.96 ± 24.12	3.72 ± 1.32	5.70 ± 0.23	0.81
4	4.5	0.82	25.19 ± 1.26	26.66 ± 1.36	33.78 ± 1.54	690.25 ± 23.61	3.25 ± 0.03	5.59 ± 0.22	2.00 ± 0.21
5	5.5	0.87	21.80 ± 1.07	25.41 ± 1.30	27.86 ± 1.27	604.10 ± 24.17	2.27 ± 1.06	4.98 ± 0.20	1.65 ± 0.13
6	6.5	0.77	24.55 ± 1.28	28.59 ± 1.46	29.67 ± 1.35	575.91 ± 23.04	2.30 ± 0.95	5.23 ± 0.21	1.52 ± 0.16
7	7.5	0.85	23.93 ± 1.21	29.85 ± 1.53	31.47 ± 1.43	608.90 ± 24.36	2.40 ± 1.08	5.00 ± 0.20	2.18 ± 0.23
8	8.5	0.78	22.31 ± 1.10	31.30 ± 1.60	31.74 ± 1.45	605.59 ± 24.23	1.84 ± 1.17	4.65 ± 0.17	1.67 ± 0.18
9	9.5	0.88	22.51 ± 1.13	31.04 ± 1.59	32.07 ± 1.46	592.23 ± 23.7	2.66 ± 1.19	4.16 ± 0.17	1.03 ± 0.11
10	10.5	0.82	22.96 ± 1.15	28.98 ± 1.48	33.06 ± 1.51	584.01 ± 23.37	1.77 ± 1.03	3.31 ± 0.13	1.50 ± 0.16
11	11.5	0.83	22.73 ± 1.11	21.31 ± 1.09	30.30 ± 1.38	585.30 ± 23.38	2.41 ± 0.97	2.64 ± 0.11	1.68 ± 0.18
12	12.5	0.84	22.00 ± 1.09	29.55 ± 1.51	27.78 ± 1.27	585.30 ± 23.4	0.72 ± 0.47	2.14 ± 0.09	1.87 ± 0.20
13	13.5	0.89	21.98 ± 1.08	30.56 ± 1.56	32.67 ± 1.49	572.72 ± 22.92	1.06 ± 0.52	1.42 ± 0.06	1.86 ± 0.20
14	14.5	0.89	21.42 ± 1.08	29.40 ± 1.51	31.96 ± 1.46	568.26 ± 22.74	0.98 ± 0.33	1.17 ± 0.05	1.78 ± 0.19
15	15.5	0.94	22.96 ± 1.20	34.43 ± 1.76	35.21 ± 1.61	614.98 ± 24.61	1.00 ± 0.01	0.58 ± 0.02	1.91 ± 0.20
16	16.5	0.97	24.47 ± 1.24	32.56 ± 1.67	36.47 ± 1.66	632.61 ± 25.31	0.73 ± 0.45	0.43 ± 0.02	1.47 ± 0.16
17	18	0.72	23.43 ± 1.19	32.12 ± 1.64	33.22 ± 1.52	623.26 ± 24.94	0.57 ± 0.43	0.11 ± 0.004	2.33 ± 0.24
MDA			0.19	0.31	0.17	3.48	-	0.047	0.41



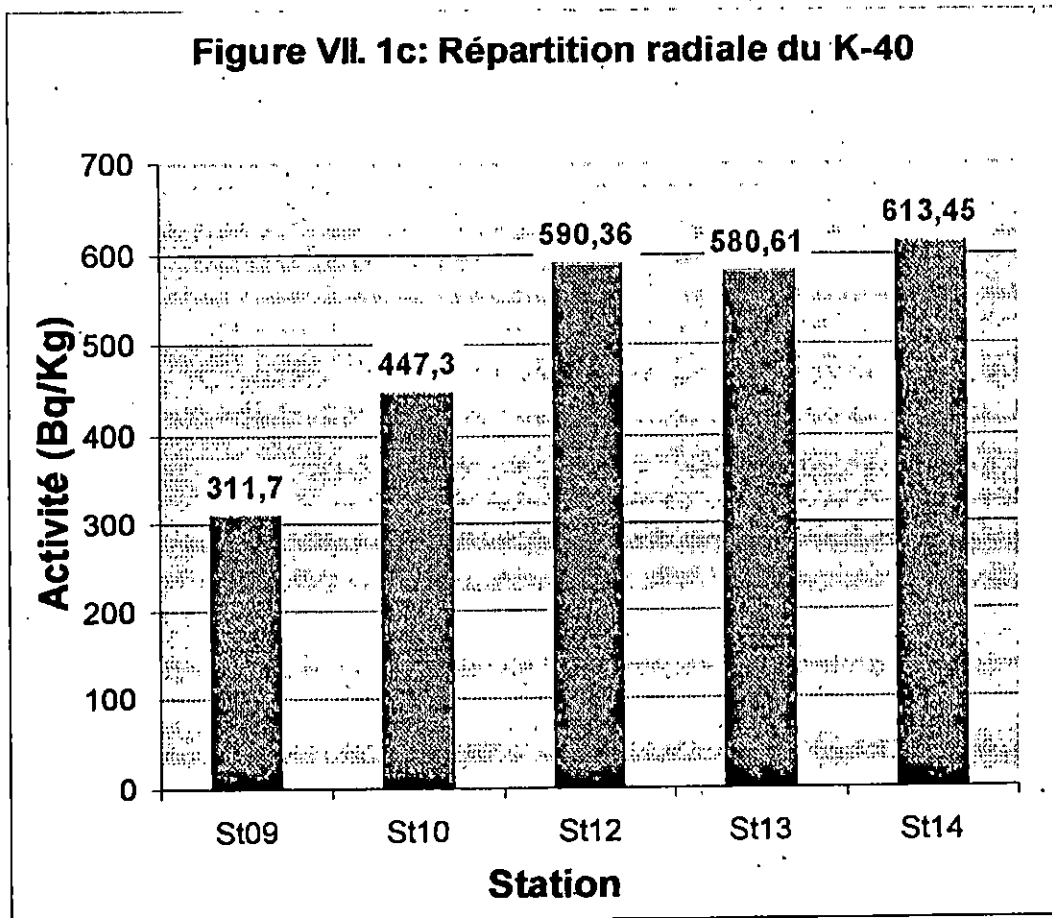
VII. 2.1.2 Radium 226 (^{226}Ra) :

Les concentrations du ^{226}Ra accusent une augmentation nette de la cote vers le large. Cette distribution pourrait être expliquée par le comportement du ^{226}Ra , identique à celui du ^{228}Ra , ou il échappe du sédiment de fond vers la colonne d'eau. Cet apport vers la colonne d'eau diminue au fur et à mesure que l'on s'éloigne de la cote, lié à l'intensité de l'hydrodynamisme.



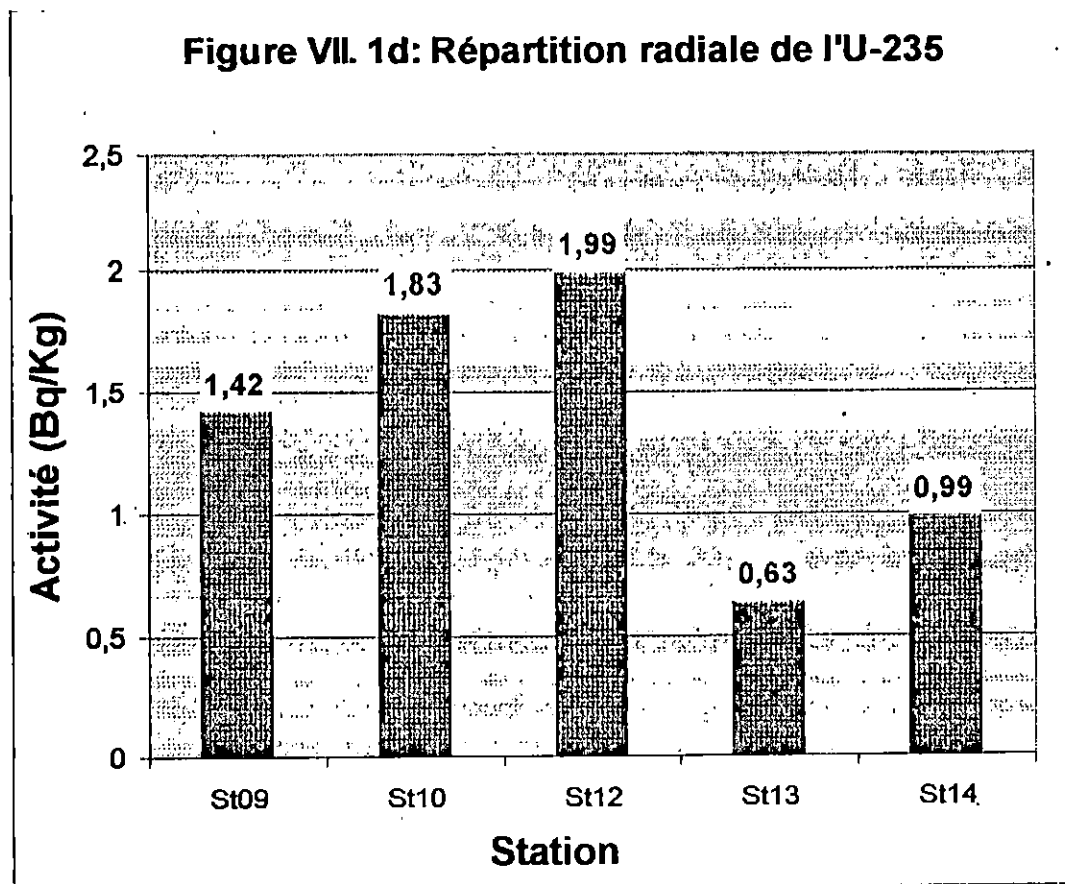
VII. 2.1.3. Potassium 40 (^{40}K) :

Les concentrations du ^{40}K dans les sédiments superficiels, augmentent de la cote jusqu'à une profondeur de 200m, qui serait liée au taux de sédimentation qui augmente au fur et à mesure que l'on se rapproche de la station 12. L'augmentation du taux de sédimentation est liée à l'abondance en matières en suspension et l'atténuation de l'hydrodynamisme, qui favorise la sédimentation. Au delà de cette profondeur, on observe une constance dans les concentrations, en tenant compte de l'incertitude sur l'activité, qui s'expliquerait par la constance de l'apport en matières en suspension qui atteignent les sédiments du fond (Figure VII.1.c).



VII. 2.1.4 Uranium 235 (^{235}U) :

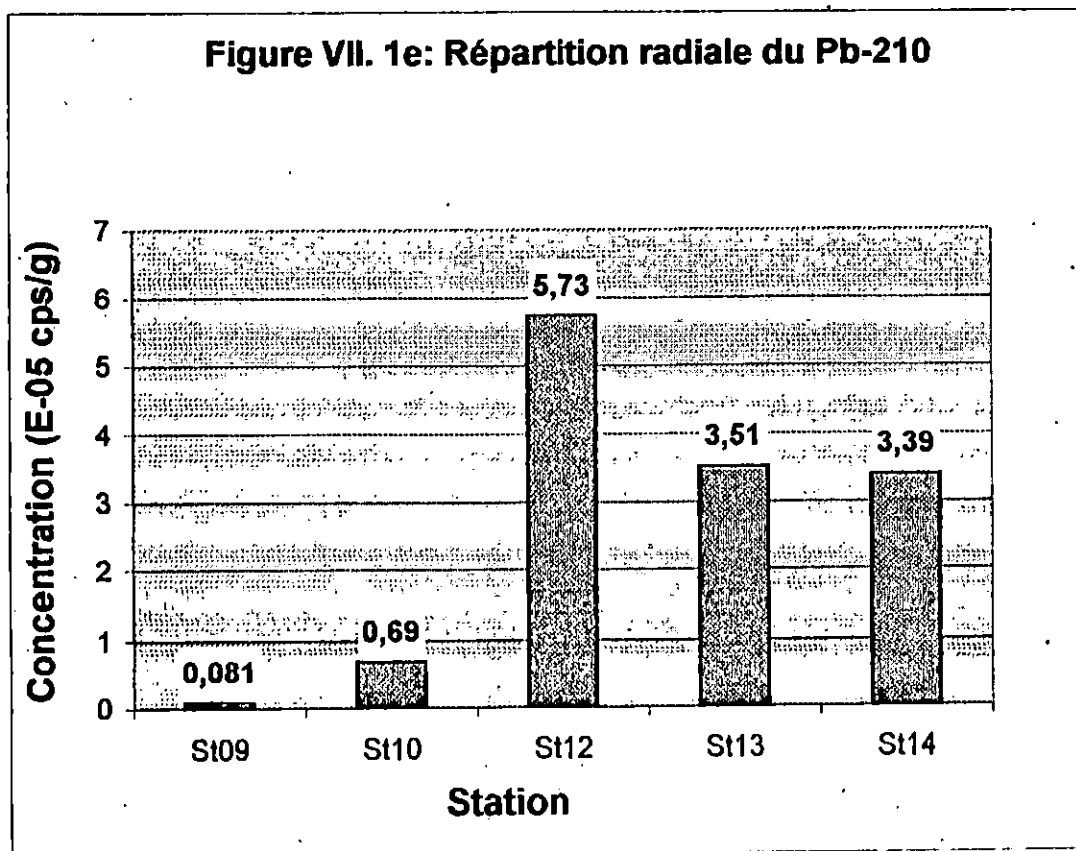
Comme nous l'avons discuté précédemment, les radionucléides ont tendance, pour certains, à se fixer sur les particules en suspension et pour d'autres à être assimilés par des espèces phytoplanctoniques pour, enfin, atteindre le fond. Par contre ^{235}U peut atteindre les sédiments du fond même par l'intermédiaire des particules de sédiments grossiers charriées depuis le continent, dont il est incorporé, ce qui expliquerait ses concentrations élevées à proximité de la cote (stations 09, 10 et 12). Au delà de la station 12, les concentrations de ^{235}U sont faibles par rapport à celles observées au voisinage de la cote, et deviennent constantes, du fait que les sédiments grossiers, charriés depuis le continent, se sédimentent en grande partie près de la cote.



VII. 2.1.5 Plomb 210 (^{210}Pb) :

La figure VII.1e montre la répartition radiale du ^{210}Pb exprimé en cps/g. Les concentrations de ce radionucléide présente une augmentation de la cote vers le large, avec une concentration maximale au niveau de la station 12.

Au fur et à mesure que l'on s'éloigne de la cote, l'atténuation de l'hydrodynamisme favorise la sédimentation d'une grande partie de particules en suspension, qui véhiculent ce radionucléide, ce qui expliquerait la valeur maximale observée au niveau de la station 12, où règnent les meilleures conditions de sédimentation (abondance en matières en suspension et faible hydrodynamisme).

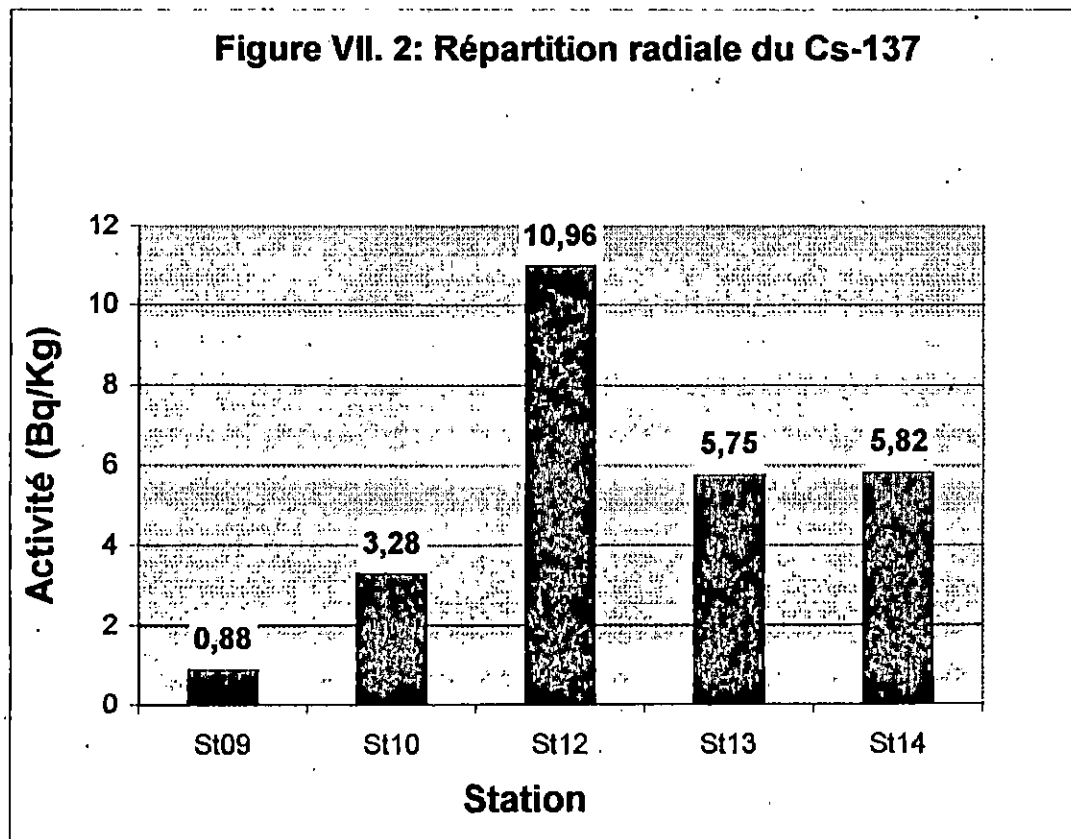


VII.2.2. Césium 137 (^{137}Cs)

La figure VII.2 montre une augmentation des concentrations du ^{137}Cs de la côte vers le large, à l'exception de la station 12, située dans la partie centrale de la zone d'étude, qui présente une concentration exceptionnellement élevée (11 Bq/Kg sec).

Cette distribution suit fidèlement la répartition des sédiments fins de la côte vers le large. En effet, le sédiment de la station 9, constitué d'un sable fin, retient la plus faible concentration (0,9 Bq/Kg se). Par contre, les valeurs élevées observées au delà de cette station, peuvent être expliquées par l'atténuation de l'hydrodynamisme au fur et à mesure que l'on s'éloigne de la côte, ce qui favorise la sédimentation des particules fines en suspension.

En outre, la valeur la plus élevée (11 Bq/Kg sec) de la station 12 est probablement due d'une part à l'abondance en matières en suspension et à l'hydrodynamisme favorable à leur sédimentation, et d'autre part au recentrage des particules fines au delà de la zone perturbée.



VII.2.3. Comparaison des résultats de quelques radionucléides :

- a) L'évolution des concentrations du ^{226}Ra le long de la radiale sont identiques à celle du ^{228}Ra ; des faibles valeurs dans les deux premières stations et des valeurs élevées et constantes dans les trois dernières stations. Ce résultat confirme le comportement identique de ces deux radionucléides dans le milieu marin.
- b) Le rapport $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$, le long de la radiale, présente des variations :
- Il est presque de 1 dans les deux premières stations et la dernière station ;
 - Il est supérieur à 1.2 au niveau des stations 12 et 13. Ces rapports pourraient être expliqués par :- L'apport au sédiment depuis la colonne d'eau du ^{228}Ra assimilé par le phytoplancton, au niveau des stations 09 et 10;
 - L'importance de l'apport du ^{228}Th adsorbés sur les particules en suspension, par rapport à l'apport du ^{228}Ra par l'intermédiaire du phytoplancton qui serait lié à la diminution du phytoplancton, au niveau des stations 12 et 13 ;
 - Le faible apport du ^{228}Th provenant de la colonne d'eau dans la dernière station, qui serait lié à l'importance de la masse d'eau.
- c) La variation des concentrations du ^{137}Cs est similaire à celle du ^{210}Pb le long de la

radiale . En effet, ces deux radionucléides présentent les valeurs les plus faibles à proximité de la cote, par un maximum au niveau de la station 12 et deviennent constantes aux deux dernières stations.

Ce résultat confirme leur comportement identique dans le milieu marin, c'est à dire leur grande réactivité vis à vis des particules fines en suspension.

VII. 3. Distribution verticale des radionucléides

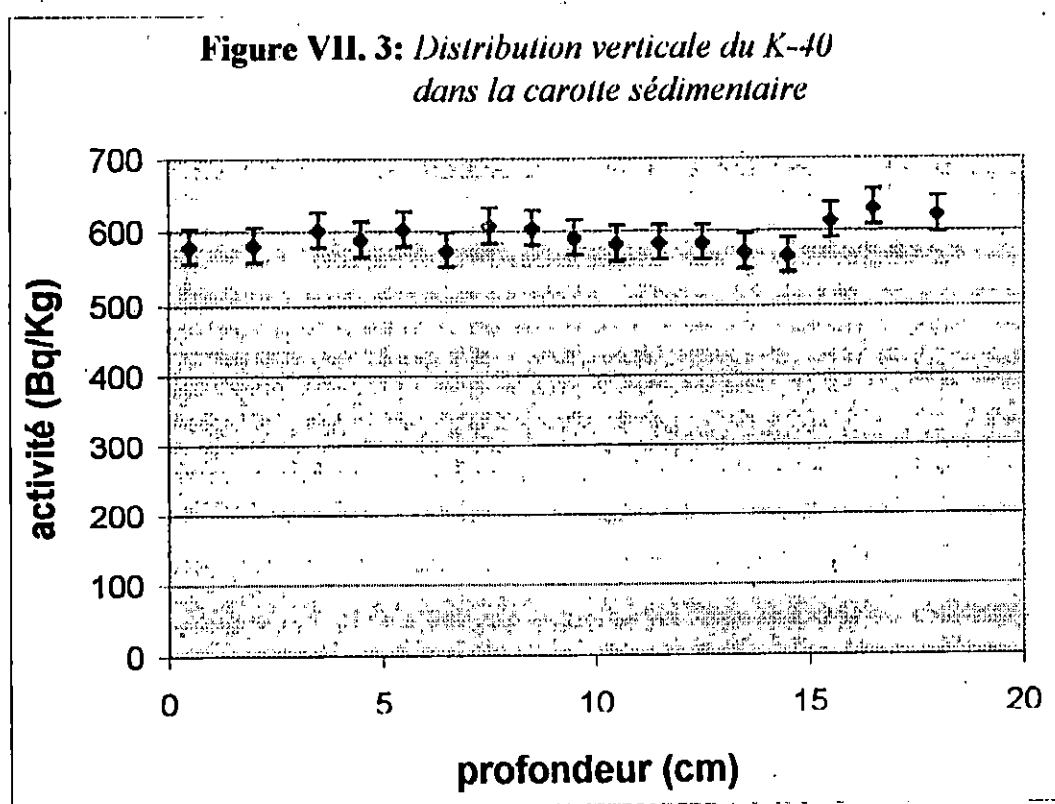
L'analyse de la carotte sédimentaire nous a permis de mesurer l'évolution en profondeur de sédiment de quelques radionucléides naturels et le ^{137}Cs .

Cette évolution en profondeur de sédiment nous a permis d'estimer le taux de sédimentation sur la base du ^{210}Pb en excès et du ^{137}Cs .

Par ailleurs, nous avons calculé l'inventaire du ^{137}Cs dans les sédiments du fond.

VII. 3. 1. Distribution verticale du ^{40}K :

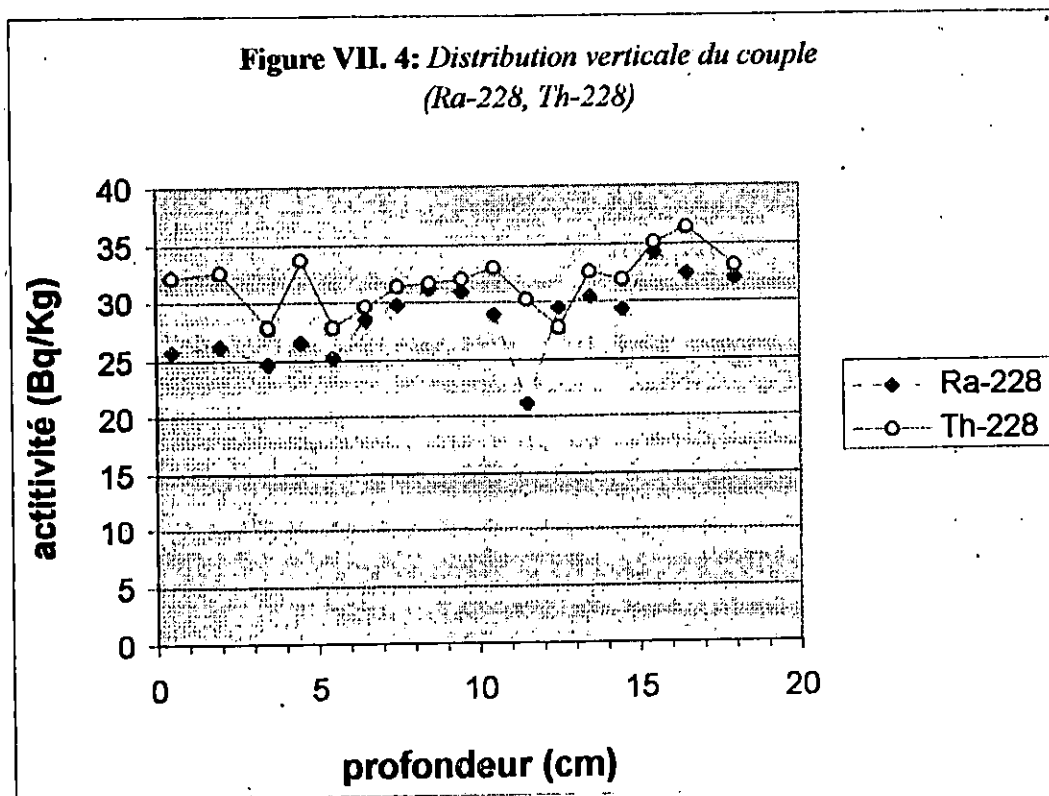
Les valeurs de concentrations du ^{40}K en profondeur de sédiment sont pratiquement constantes. Néanmoins, la légère variation serait liée aux taux d'accumulation des particules sédimentaires et des débris de biote sur le fond marin, en raison de la variation dans la concentration en matières en suspension (Figure VII.3).



VII. 3. 2. Thorium 228 - Radium 228

La Figure VII.4 montre une certaine constance du ^{228}Th en profondeur de sédiment, alors que le ^{228}Ra présente une légère variation.

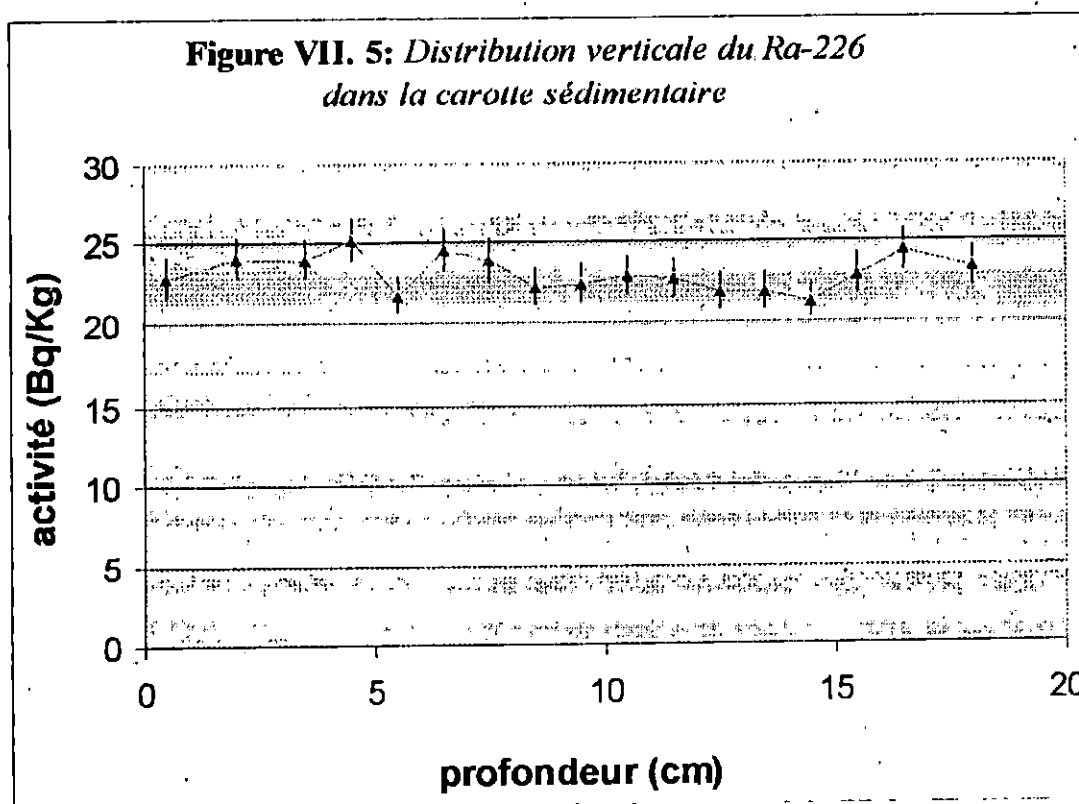
En outre, on observe un excès du ^{228}Th par rapport au ^{228}Ra . Cet excès du ^{228}Th dans les sédiments côtiers serait dû à la capacité de migration du ^{228}Th qui s'échappe à travers l'eau interstitielle du sédiment vers la colonne d'eau, où il augmente la concentration du ^{228}Th .



VII. 3. 3. Radium 226 (^{226}Ra) :

Les activités du ^{226}Ra en profondeur de sédiment allant de 21 à 25 Bq/Kg sec, par conséquent on n'observe pas une variation importante de l'activité de ce radionucléide, compte tenue de l'incertitude dans la mesure de l'activité, (Figure VII.5).

Cette constance s'explique, probablement, par la contribution faible du ^{226}Ra dissous, provenant de la colonne d'eau, dans la Méditerranée. (Yokoyama, 1985)



VII. 3. 4. Distribution verticale du Plomb 210 (^{210}Pb):

Le ^{210}Pb est un radionucléide naturel d'une période de 22.26 ans. Sa présence dans le milieu marin a principalement, deux origines différentes (Gheddou et al., 1998 ; Andrew, 1995):

- la décroissance in-situ de son père effectif ^{226}Ra présent dans les sédiments.
- Les dépôts sec et humide du ^{210}Pb produit par la désintégration du ^{222}Rn dans l'atmosphère et la décroissance du ^{226}Ra présent dans la colonne d'eau.

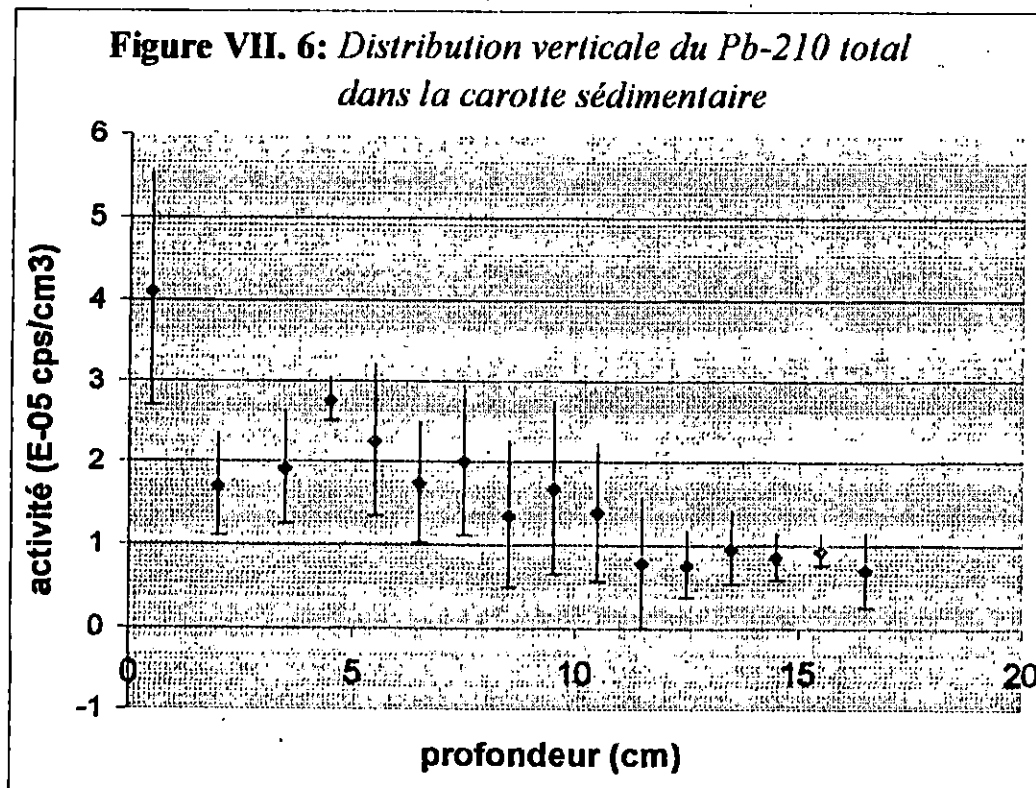
Le ^{210}Pb est caractérisé par son insolubilité dans l'eau de mer (Gheddou et al, 1998 ; DeMaster et al, 1985) et sa fixation sur les particules en suspension l'entraîne au fond marin par sédimentation.

La fraction provenant de la colonne d'eau est communément appelée " ^{210}Pb excès".

Les résultats du ^{210}Pb exprimés en taux de comptage par unité de masse (cps/g) ont été convertis aux cps/cm³, en multipliant par la densité des grains solides ρ (g/m³). A noter que le calcul tient compte de la variation de la densité en fonction de la profondeur dans le sédiment.

Les valeurs ainsi obtenues concernant le ^{210}Pb en cps/cm³ présentent un profil vertical

décroissant dans la carotte sédimentaire jusqu'à une profondeur de 10 cm (Figure VII.6). Au delà de cette profondeur, les concentrations deviennent presque constantes en fonction de la profondeur dans le sédiment, et la concentration moyenne est de 0.664 cps/cm^3 . Cette dernière partie du profil correspond au ^{210}Pb produit in situ (Gheddou et al, 1998).



Estimation du taux de sédimentation

Une fraction du ^{210}Pb provient de la décroissance dans l'atmosphère du ^{222}Rn qui est en émanation continue à partir de la terre. Une fois formé, dans l'atmosphère, le ^{210}Pb rejoint les surfaces continentales et océaniques par dépôt sec et humide.

Cette fraction du ^{210}Pb dans les sédiments du fond marin, est utilisée pour l'estimation du taux de sédimentation dans les zones côtières, et l'évaluation du taux de biodiffusion dans les zones de plaines abyssales.

Le ^{210}Pb en excès est obtenu par la soustraction de la valeur moyenne du ^{210}Pb in situ, du ^{210}Pb total.

Les processus dominants affectant la distribution verticale des radionucléides dans les sédiments marins sont le mélange diffusif par les organismes benthiques et les courants de fond, l'accumulation par sédimentation et la décroissance radioactive. Ces processus sont représentés par l'équation différentielle suivante (Goldberg et Koide, 1962; Berner, 1980):

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_B \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - S \frac{\partial C}{\partial z} - \lambda C \quad (\text{VII. 1})$$

où :

- z : est la profondeur dans les sédiments (cm).
- $C = \rho A$: activité volumique du radionucléide considéré (Bq/cm^3)
- ρ : densité des grains solides à la profondeur z (g/cm^3)
- A : concentration massique d'activité à la profondeur z (Bq/g)
- t : temps (an)
- D_B : coefficient de biodiffusion (cm^2/an)
- S : vitesse de sédimentation (cm / an)
- λ : constante radioactive du radionucléide (an^{-1})

Dans l'équation (VII. 1), les paramètres D_B et S sont supposés être constants dans la couche mélangée. La distribution verticale du ^{210}Pb en excès est obtenue par la résolution, de l'équation précédente avec les hypothèses suivantes.

- $\frac{\partial C}{\partial t} = 0$;
- $C(z) = C_0$ à $z = 0$;
- $C(z) \rightarrow 0$ Quand $z \rightarrow \infty$.

La solution est, alors, donnée par:

$$C(z) = C_0 \exp\left(-\frac{S - \sqrt{S^2 + 4D_B\lambda}}{2D_B} z\right) \quad (\text{VII. 2})$$

Cependant, pour des échelles de temps ≤ 100 an, la sédimentation dans les régions côtières est considérablement plus importante devant la bioturbation (DeMaster et al, 1985). Par conséquent, le terme de biodiffusion peut être négligé devant le terme de sédimentation et l'équation (VII. 2) prend, alors, la forme suivante :

$$C(z) = C_0 \exp\left(-\frac{\lambda}{S} z\right) \quad (\text{VII. 3})$$

Dans notre cas, le ^{210}Pb n'a pas été déterminé en Bq/cm^3 mais en cps/cm^3 . Cependant,

la formulation, précédente demeure valable. En effet, le facteur de passage du taux de comptage par unité de volume $\tau(\text{cps}/\text{cm}^3)$ à l'activité par unité de volume $A(\text{Bq}/\text{cm}^3)$ ne dépend pas de la profondeur dans le sédiment:

$$C(\text{Bq}/\text{cm}^3) = \tau(\text{cps}/\text{cm}^3) \frac{1}{\varepsilon.I} \quad (\text{VII. 4})$$

Par conséquent, l'équation (VII. 3) peut être réécrite en termes de taux de comptage, sous la forme suivante:

$$\tau(z) = \tau_0 \exp\left(-\frac{\lambda}{S} z\right) \quad (\text{VII. 5})$$

Par ailleurs, on a procédé à l'interpolation au sens des moindres carrés des points expérimentaux $(z_i(\text{cm}), \tau_i(\text{cps}/\text{cm}^3))$ jusqu'à la couche 11 (Figure VII. 7).

L'équation expérimentale ainsi obtenue est :

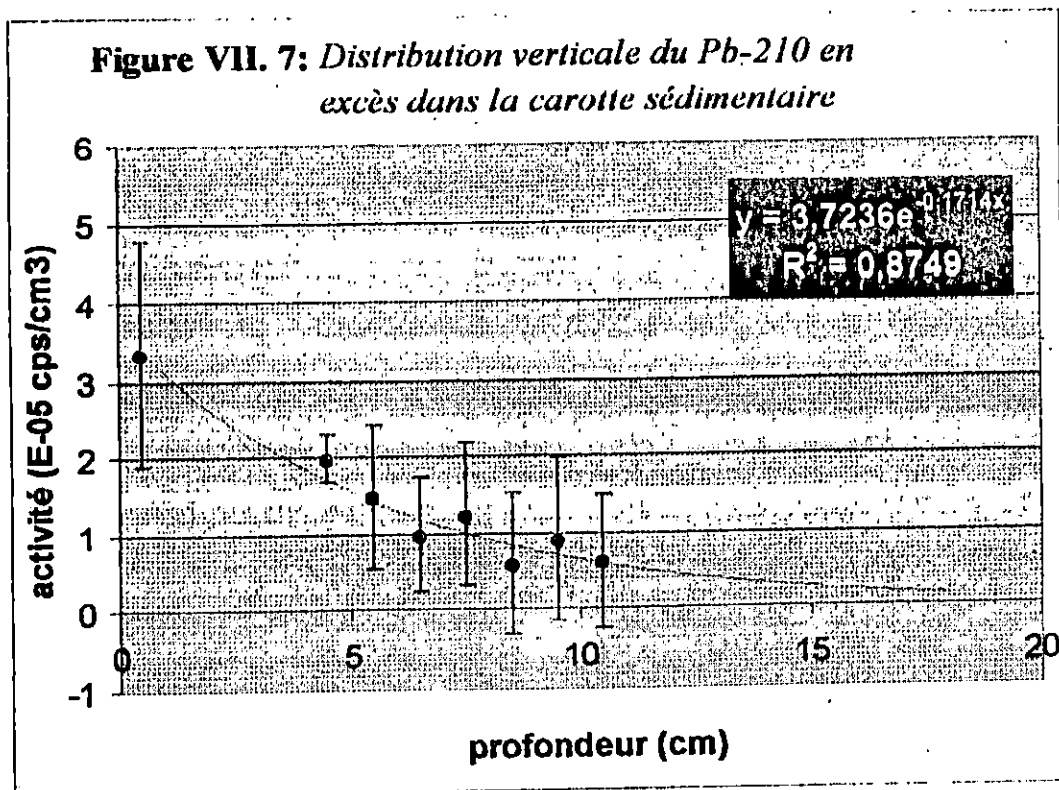
$$\tau(z) = 3.72 \exp(-0.1717.z) \quad (\text{VII. 6})$$

L'équation expérimentale ainsi obtenue est :

$$\tau(z) = 3.72 \exp(-0.1717.z) \quad (\text{VII. 6})$$

En comparant l'équation (VII.5) à l'équation (VII.6) on déduit la valeur du taux de sédimentation :

$$S = 0.18 \text{ cm/an.}$$



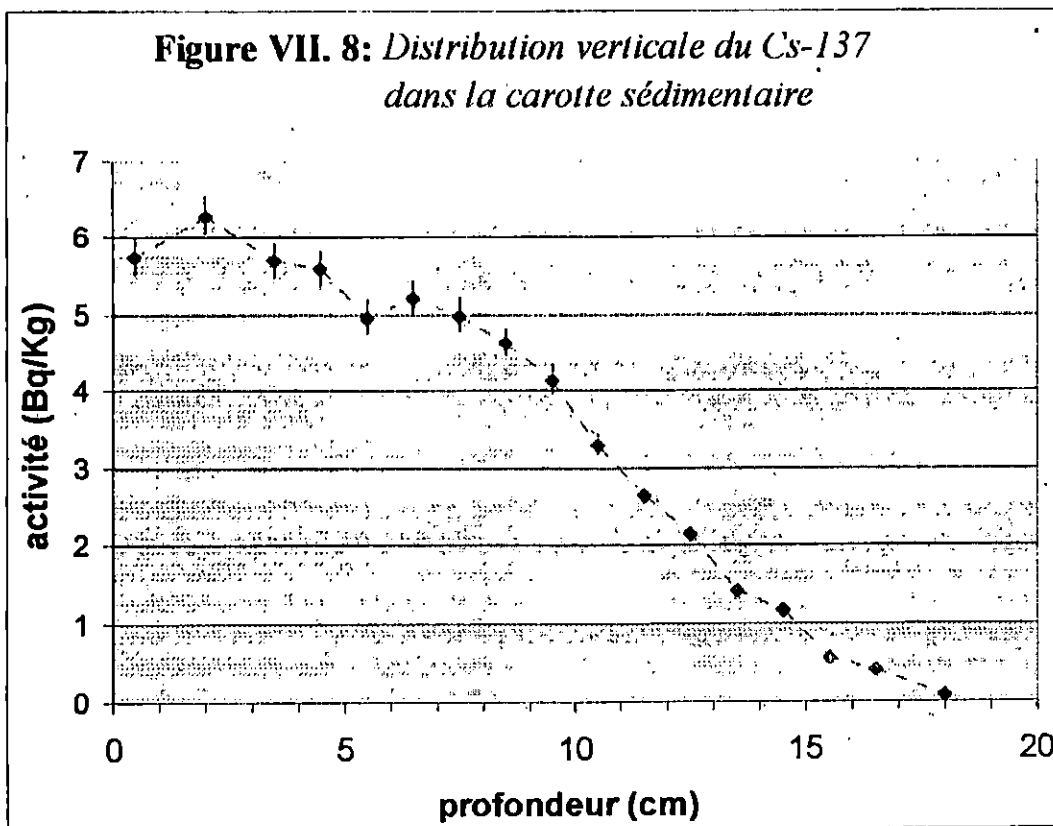
VII. 3. 5. Distribution verticale du ^{137}Cs

La Figure VII.8 montre la répartition verticale du ^{137}Cs présent dans le sédiment. On constate que la concentration diminue régulièrement à mesure que l'on descend dans le sédiment.

Le profil du ^{137}Cs dans la carotte sédimentaire, présente deux régions distinctes, la première

présente une pente douce jusqu'à une profondeur de 6 cm, ou delà de cette profondeur, la deuxième région présente une pente relativement brusque.

La pente douce de la première région peut être expliquée par le remaniement du sédiment de surface par l'activité des organismes benthiques.



Par ailleurs, cette répartition du ^{137}Cs en profondeur de sédiment fait apparaître deux pics; le premier se situe à 2 cm, et le second à 6,5 cm :

L'évolution des retombés atmosphériques présente deux périodes de flux majeurs, à savoir celle de 1962 - 1964 provoquée par des campagnes intensives de tests d'armes

nucléaires dans l'atmosphère, et celle de 1986 due aux apports de l'accident de Chernobyl (Andrew, 1995). De ce fait, les deux pics observés dans le profil peuvent être attribués ; le premier aux apports de l'accident de Chernobyl et le deuxième aux apports de 1963.

En fait, l'identification de ces pics nous a permis d'estimer le taux de sédimentation, sur la base du temps écoulé depuis les deux événements respectifs, d'une part, et la profondeur dans le sédiment du pic correspondant, d'autre part. Les résultats obtenus sont de 0.18cm/an à partir du pic de 1986, et de 0.19cm/an à partir du deuxième pic (1963).

Nous constatons que ces valeurs sont en accord satisfaisant avec celle estimée par le ^{210}Pb en excès.

Burns et Villeneuve (1983) reportent un taux de sédimentation de 0,1 cm/an mesuré en utilisant le ^{210}Pb au large de Monaco, à une profondeur de 200 mètres. Par ailleurs, Jennings et al. (1985) ont obtenu un taux de sédimentation de l'ordre de 0,5 cm/an en Mer de Ligure, sur la base du profil du $^{240+239}\text{Pu}$. Par contre, Smith et Walton (1980) ont obtenu un taux de sédimentation de 0.1 cm/an au large des côtes Québécoises en utilisant le ^{210}Pb .

Par ailleurs, le profil obtenu montre que le césium est détectable jusqu'à 15 cm, ce qui est supérieur à ce que l'on pourrait prévoir. En effet, le ^{137}Cs n'est introduit dans l'environnement marin qu'à partir du début des années 1950, et si l'on considère le taux de sédimentation, estimé précédemment, le ^{137}Cs ne dépasserait pas les 10 premiers centimètres dans la carotte sédimentaire. Cette migration en profondeur dans le sédiment serait due aux phénomènes de diffusion et de transport de masse de ^{137}Cs , dans les eaux interstitielles (AIEA/LEM, 1994). Cependant, la concordance constatée entre les valeurs du taux de sédimentation obtenues par le ^{210}Pb et le ^{137}Cs , suggère que l'horizon des deux pics du ^{137}Cs n'a pas été altéré par ces phénomènes de transport.

Inventaire du ^{137}Cs :

Le bilan ou inventaire I du ^{137}Cs en termes d'activité par unité de surface de sédiment est calculé par la formule suivante :

$$I = \frac{\sum A_i m_i}{S} \quad (\text{VII.7})$$

où :

- A_i : concentration d'activité de la couche i (Bq/Kg);
- m_i : masse totale sèche de la couche i (Kg);
- S : section de la carotte (m^2).

La sommation porte sur toutes les couches de la carotte.

L'inventaire du ^{137}Cs calculé dans notre région d'étude est de 512 Bq/m^2 .

Gheddou et al.(1998) reporte un inventaire du ^{137}Cs , dans les sédiments du Bassin Algérien de l'ordre de 185 à 255 Bq/m^2 . L'écart par rapport à l'inventaire déterminé dans notre région d'étude peut être expliqué par le rôle de la masse d'eau sus-jacente sur la sédimentation des particules en suspension. En effet, celles-ci prennent un temps plus important pour atteindre le fond marin dans les régions de plaines abyssales, contrairement aux eaux peu profondes où le temps de résidence de la matière en suspension est relativement court. Cette constatation rejoint la conclusion à laquelle ont abouti Delfanti et al. (1994), selon laquelle l'inventaire du $^{239+240}\text{Pu}$ diminue au fur et à mesure que la profondeur de la colonne d'eau augmente.

Comparaison au dépôt intégré

Afin de comparer l'inventaire du ^{137}Cs , obtenu dans notre étude au dépôt atmosphérique intégré (dans le temps) de ce radionucléide, nous avons calculé le dépôt cumulé dû aux retombes des essais d'armes nucléaires dans l'atmosphère, mesurés du début des années 1950 jusqu'à 1984 et des dépôts générées par l'accident de Chernobyl de 1986 à 1992.

Période 1960-1984:

Les données utilisées pour cette période sont celles correspondant aux dépôts annuels mesurés dans les côtes Italienne et reportées par Cappelletti et Buffoni (1997).

Notre traitement a consisté à corriger les dépôts annuels pour la décroissance radioactive. La somme des dépôts couvrants cette période a été ensuite calculée, le dépôt total obtenu est de 2087 Bq/m^2 .

Période 1954-1959:

Les dépôts en cette période, ont été calculés sur la base du profil des dépôts du plutonium reporté par Edington et al. (1975) pour la période (1954-1959), d'une part,

et des dépôts du ^{137}Cs en 1963 reporté par Cappelletti et Buffoni (1997), d'autre part. Dans notre calcul, on a supposé que l'évolution du dépôt du ^{137}Cs est la même que celle du plutonium.

Les valeurs ainsi déduites pour le ^{137}Cs ont été également corrigées pour la décroissance radioactive. La somme des dépôts obtenue est de 874 Bq/m^2 .

Période 1986-1992:

Les retombées atmosphériques de cette période sont dues essentiellement aux apports issues de l'accident de Chernobyl. Le dépôt intégré corrigé est égal à 1711 Bq/m^2 .

Sur la base des trois périodes suscitées, le dépôt intégré des retombées atmosphériques correspondant à la période globale (1954-1992) du ^{137}Cs est de 4673 Bq/m^2 .

En calculant le rapport, l'inventaire calculé dans notre région d'étude représente environ **11%** du dépôt intégré.

Ce résultat se rapproche des pourcentages reportés par Cochran (1985) et Papucci et al. (1996).

Conclusion

Ce travail nous a permis, d'une part, de nous initier au domaine de la radioactivité dans le milieu marin et, d'autre part, de nous familiariser avec les différentes méthodes et techniques d'échantillonnage, d'analyse et d'évaluation de la radioactivité dans les sédiments.

A cet effet, une carotte sédimentaire et quatre échantillons de sédiment de surface ont été prélevés dans la baie de Bouismail, en septembre 1997, et analysés par spectrométrie gamma à l'aide d'un détecteur à Germanium de haute pureté, afin de doser les radionucléides d'intérêt.

L'exploitation des résultats d'analyse nous a permis d'étudier la distribution verticale ainsi que la répartition radiale de la radioactivité dans les sédiments de la région.

Les résultats obtenus à travers cette étude consistent essentiellement à :

- Identifier l'ensemble des radionucléides naturels et de révéler la présence du ^{137}Cs (élément artificiel), et d'en évaluer les niveaux de base dans les sédiments ;
- Apprécier l'efficacité et l'élégance des méthodes radioactives comme outil d'investigation dans l'étude des processus marins ;
- Suivre le transport vertical de la radioactivité dans les sédiments ;
- Reconnaître les deux origines les plus importantes de la radioactivité artificielle cumulée dans les sédiments de la Baie de Bouismail (essais atmosphériques d'armes nucléaires et accident de Chernobyl) ;
- Mettre en évidence l'effet de certains processus océaniques sur la distribution (transversale et verticale) de la radioactivité dans les sédiments ;
- Estimer la vitesse de sédimentation sur la base de la distribution verticale du ^{137}Cs et ^{210}Pb en excès sur des échelles de temps de 10, 30 et 100 ans ;
- Et à déterminer la fraction du ^{137}Cs des retombées atmosphériques transférée au sédiments.

Finalement, conscients du fait que ce travail n'est pas tout à fait exhaustif, d'autres études similaires plus approfondies s'avèrent intéressantes. A cet effet, les développements ultérieurs qu'il serait souhaitable d'entreprendre peuvent, à notre avis, porter sur l'étude des différents processus sédimentaires en se basant sur d'autres radionucléides (naturels et artificiels), que le

temps imparti à notre travail ne nous a pas permis d'inclure. De même que l'utilisation de radionucléides appropriés permettrait de quantifier le coefficient de bioturbation dans les sédiments superficiels de la région.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- AIEA/LEM, 1994. Rapport d'activités récentes. 96 pp.
- AIEA bulletin ,1997. Evaluation des déchets radioactifs : expérience et enjeux dans le monde .
36 pp
- Amiard-Triquet C. et Amiard J.C ., 1980. radioécologie des milieux aquatiques . Ed .Masson
(Paris). 191 pp.
- Andrew B.C et Croudace I.W., 1996. Sediment accretion and recent sea-level rise in the
Solent, Southern England: Inferences from radiometric and geochemical studies.
estuarine, coastal and shelf science, N43, 449-467 pp.
- Bennadji K., 1987. Analyse d'échantillons solides par spectrométrie gamma pour le control de
l'environnement marin: application aux sédiments de la zone de balancement des
marées de Solway Firth (Ecosse).These de Magister , CRS-Alger . 126 pp
- Boussaboune F. et Dafia K., 1997. Les métaux traces et les radioéléments dans l'herbier à
posidonia oceanica. Mémoire d'Ingénieur d'état, USTHB-Alger.
- Braik J.,1989. Etude de la dynamique sédimentaire devant Bou-Ismaïl.These de
Magister,USTHB-Alger.
- Burns K.A. et Villeneuve J.P., 1983. Biogeochemical processus affecting the distribution and
vertical transport of hydrocarbon residues in the coastal Mediterranean. geochim.
cosmochim. Acta, N47, 995-1006 pp.
- Calet J,1972.Les sédiments organogènes du précontinent Algerien. Ed.du musium(Paris),
97-102 pp.
- Cember H ., 1983. Introduction to health physics. Ed pergamon press , 519 pp.
- Cochran J.K .,1985. Particle mixing rates in sediments of the eastern equatorial Pacific :
Evidence ^{210}Pb , $^{239, 240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs distributions at MANOP sites. in geochimica et
cosmochimica acta, vol.49, 1195-1210 pp.
- Coppens R ., 1957. La radioactivité des roches . série que sais-je . Ed presse universitaire de
France (Paris), 126 pp.
- Daniel B., 1966.Les radionucléides : production-dosage-application . Ed Masson et Cie
éditeur , 288 pp.
- Daniel B.,1990. Les rayonnements ionisants : detection , spectrométrie et dosimétrie . Ed.
Masson , 255 pp.

- Debertin K and Guelmer K., 1988. Gamma-ray and X-ray spectrometry with semi-conductor detectors. Ed. Elsevier Science B.V., 399 pp.
- Delfanti R., Papucci C., Testa C., Desideri D., Meli M.A. et Roselli C., 1994. Distribuzione verticale ed inventari di $^{239,240}\text{Pu}$ in sedimenti di mare profondo del Mediterraneo (bacino Algerino; Mar Ionio), in Atti Convegno "La radioattività ambientale nell'area del Mar Mediterraneo", 97-103 pp.
- DeMaster D.J., Brewster D.C., McKee B.A. et Nittrouer C.A., 1991. Rates of particle scavenging, sediment reworking, and longitudinal ripple formation at the HEBBLE site based on measurements of ^{234}Th and ^{210}Pb in Marine Geology, No.99, 423-444 pp.
- DeMaster D.J., McKee B.A., Nittrouer C.A., Brewster D.C. et Biscaye P.E., 1985. Rates of sediment reworking at the HEBBLE site based on measurements of ^{234}Th , ^{137}Cs and ^{210}Pb . in marine geology, 133-143 pp.
- Edgington D. N., Wahlgren M.A. and Marshall J.S., 1975. The behavior of plutonium in aquatic ecosystems: A summary of studies on the Great Lakes. in Environmental toxicity of aquatic radionuclides: Models and mechanisms. Ed ANN Arbor science publishers inc. 45-80 pp.
- Eisenbud M., 1973. Environmental radioactivity from industrial and military. Ed academic press
- Gheddou A., Papucci C et Delfanti R., 1998. Evaluation quantitative du coefficient de biodiffusion dans les sédiments superficiels du Bassin Algérien par le ^{210}Pb en excès, ^{137}Cs et $^{239,240}\text{Pu}$. soumis pour publication au J. Environ. Radioactivity.
- Got H., 1974. Les variations de la radioactivité naturelle des sédiments superficiels du plateau continental pyreno-catalan (Espagne). in rapp. comm. int. mer Medit., 22, 8, 37-37 pp.
- Hairr L., 1974. An investigation of mechanisms of radiocaesium cycling in estuarine sediments. Ph.D. Thesis, New York Univ, New York.
- Holm E., 1994. Radioecology: lectures in environmental radioactivity. Ed world scientific, 352 pp.
- Ivanovich M. et Harmon R.S., 1982. Uranium series disequilibrium: applications to environmental problems. Ed clarendon press (Oxford). 565 pp.
- Jennings C.D., Delfanti R. et Papucci C., 1985. The distribution and inventory of fallout Plutonium in sediments of the Ligurian sea near La Spezia, Italy. J. Environ. Radioactivity, N02, 293-310 pp.
- Kownacka L, Jaworowski Z., 1995. Vertical distribution of natural and artificial radionuclides in the atmosphere. in AIEA, 1995. Environmental impact of radioactive releases, processing of a symposium, Vienna, 8-12 may 1995. 69-77 pp.

- Leclaire L., 1972. La sédimentation holocène sur le versant méridional du bassin Algéro-Baleaires (précontinent Algérien). Ed. du musium, 393 pp.
- Livingston H.D., Bowen V.T. et Burke J.C., 1977. Fallout radionuclides in Mediterranean sediments. rapp. comm. int. mer Medit., vol 24, fas 03, 37-38 pp.
- Meziane Y., 1987. Contribution à l'étude d'impact de la pollution sur la distribution spatio-temporelle des peuplements phytobenthiques dans la baie de Bou-Ismaïl. Thèse de Magister, ENS-Alger.
- Millot C., 1985. Somme features of the Algerian current. J. of geophysic research, vol 90 NC 4. 7169-7176 pp.
- Neal W., 1964. Les sources de radionucléides. in FAO, 1961. Aspect de la contamination normale et accidentelle dans le cadre de l'agriculture et de la santé publique. Collection: Energie atomique, cahier N 05. 19-24 pp.
- Noureddine A., 1987. Measurement of the uptake of alpha and gamma-emitting radionuclides by biological for marine environment control purposes. application to the west Scotland coast. These de Magister, HCR-Alger.
- OMS, 1969. La surveillance des radionucléides dans l'air et dans l'eau.
- OMS, 1987. Critères d'hygiène de l'environnement : quelques radionucléides. Publié sous la tripartite PNUE, OIT et OMS. 261 pp.
- ONU, 1992. Rayonnements ionisants : sources et effets biologiques. rapp. ass. genrl (New York), 1985.
- Papucci C., Charmasson S., Delfanti R., Gasco C., Mitchell P. et Sanchez-Cabeza J.A., 1996. Time evolution and levels of man-made radioactivity in the Mediterranean sea. in radionuclides in the oceans : Inputs and inventories. Les éditions de physique., 177-197 pp.
- PNUE/AIEA, 1992. Evaluation de l'état de pollution de la mer Méditerranée par les substances radioactives. map.technical reports series N 62 (Athenes), 133 pp.
- Robbins J.A., et Edgington D.N., 1976. Determination of recent sedimentation rates in Lake Michigan using ^{210}Pb and ^{137}Cs . in Geochimica et Cosmochimica Acta, vol. 30, 285-304 pp.
- Smith J.T., Appleby P.G., Hilton J. et Richardson N., 1997. Inventories and fluxes of ^{210}Pb , ^{137}Cs and ^{241}Am determined from the Soils of three Small Catchments in Cumbria, UK. in J. Environ. Radioactivity, vol. 37, No.2, 127-142 pp.
- Smith J. N., Boudrou B.P. et Noschkin, 1986. Plutonium and ^{210}Pb distribution in Northeast Atlantic sediment : subsurface anomalies caused by non local mixing. In Earth and planetary science letters, N 81, 15-28 pp.

- Smith J.N et Walton A., 1980. Sediment accumulation rates and geochronologies measured in the Saguenay Fjord using the ^{210}Pb dating method. in *geochimica et cosmochimica Acta*, vol. 44, 225-245 pp.
- Thomson J., Colley S. and Weaver P. P. E., 1988. Bioturbation into recently emplaced deep-sea turbidite surface as revealed by $^{210}\text{Pb}_{\text{excess}}$, $^{230}\text{Th}_{\text{excess}}$ and planctonic foraminifera distributions. *Earth and Planet. Sci. Lett.*, **90**: 157-173.
- Yokoyama Y., Nguyen H.V., Lambert C.E. et Chesselet R., 1985. Etude de bioturbation dans les sédiments superficiels de la Méditerranée occidentale par le traceur ^{210}Pb . *Oceanologica Acta*, Vol 8 N 03, 285 -291.

Annexe

Pour certains radionucléides, le calcul de l'activité nécessite un traitement particulier, comme dans le cas d'interférence cité précédemment pour le pic 186 keV.

Pour calculer l'activité du ^{226}Ra au pic 186, nous allons procéder à la détermination du N du ^{235}U et N du ^{226}Ra .

La somme du $N(^{235}\text{U})$ et $N(^{226}\text{Ra})$ nous donne la surface réelle totale (N) au pic 186 :
 $(N_{\text{total}} = N(^{235}\text{U}) + N(^{226}\text{Ra}))$.

Pour chaque échantillon considéré, l'activité calculée de ^{235}U sera la même indépendamment du pic considéré :

$$N(^{235}\text{U}) = A(^{235}\text{U}) \times \epsilon(185.7) \times I(185.7) \times t_c \times m \text{ où:}$$

- $\epsilon(186)$ est l'efficacité au pic 186 keV.
- $I(186)$ est l'intensité du pic 185.7 de ^{235}U .

Une fois, qu'on a calculé le N de ^{235}U , on peut déduire le N de ^{226}Ra au pic 186.2 par la formule suivante :

$$N(^{226}\text{Ra}) = N_{\text{Total}} - N(^{235}\text{U})$$

Enfin, l'activité du ^{226}Ra est calculée par la relation suivante :

$$A_{\text{Ra}} = N(^{226}\text{Ra}) / \epsilon(186.2) \times I(186.2) \times t_c \times m \text{ où:}$$

- $\epsilon(186.2)$ est l'efficacité au pic 186
- $I(186.2)$ est l'intensité du pic Ra-226 à l'énergie 186.2 KeV