

وزارة التعليم العالي والبحث العلمي

Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

المدرسة الوطنية العليا للعلوم البحر وتهيئة الساحل

Ecole Nationale Supérieure des Sciences de la Mer et de l'Aménagement du Littoral



MEMOIRE DE FIN d'ETUDE EN VUE DE L'OBTENTION DU DIPLOME D'INGENIORAT EN
SCIENCES DE LA MER

OPTION : Ingénierie de l'Environnement Marin et Côtier

Thème :

**Contribution à l'étude de la radioactivité
atmosphérique du site d'Alger :
surveillance radiologique et origine des
masses d'air**

Présenté par : Maddi Anissa & Moussoud Abdelmalek Anis

Soutenu le 15/12/2020 à 10h00 devant le jury suivant :

Dr. H. OTHMANI	MCB	ENSSMAL	Président
M. M.ZERROUKI	MAA	ENSSMAL	Examinateur
Mme. A.HAMMADI	Chargée de recherche	CRNA	Examinatrice
Dr. D.TAIEB ERRAHMANI	Chargé de recherche	CRNA	Promoteur
Dr. F.LOUANCHI	Professeur	ENSSMAL	Co-promotrice
Dr. A.NOUREDDINE	Directeur de recherche	CRNA , retraité	Invité

Promotion 2020

وزارة التعليم العالي والبحث العلمي

Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

المدرسة الوطنية العليا لعلوم البحر وتهيئة الساحل

Ecole Nationale Supérieure des Sciences de la Mer et de l'Aménagement du Littoral



MEMOIRE DE FIN d'ETUDE EN VUE DE L'OBTENTION DU DIPLOME DE MASTER

Domaine : Science de la nature et de la vie

Filière : Hydrobiologie marine et continentale

Spécialité : Ingénierie de l'environnement marin et côtier

Thème :

**Contribution à l'étude de la radioactivité
dans l'atmosphère du site d'Alger :
surveillance radiologique et origine des
masses d'air**

Présenté par : Maddi Anissa & Moussoud Abdelmalek Anis

Soutenu le 15/12/2020 à 10h00 devant le jury suivant :

Dr. H. OTHMANI	MCB	ENSSMAL	Président
M. M.ZERROUKI	MAA	ENSSMAL	Examinateur
Mme. A.HAMMADI	Chargée de recherche	CRNA	Examinatrice
Dr. D.TAIEB ERRAHMANI	Chargé de recherche	CRNA	Promoteur
Dr. F.LOUANCHI	Professeur	ENSSMAL	Co-promotrice
Dr. A.NOUREDDINE	Directeur de recherche	CRNA , retraité	Invité

Promotion 2020

Remerciements

Nous tenons tout d'abord à remercier le bon Dieu que grâce à lui nous avons eu la chance et le pouvoir d'accomplir ce modeste travail.

Ce travail a été réalisé dans le Département de l'environnement et sûreté nucléaire du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger CRNA. Nous remercions le personnel du laboratoire de l'environnement qui nous a aidé à réaliser notre travail.

*Nous tenons à remercier grandement **Mr. Taieb Errahmani Djamel**, chercheur confirmé au CRNA, pour avoir accepté de diriger, de nous avoir donné la chance d'effectuer la pratique au sein du laboratoire l'environnement et de suivre constamment le progrès de ce travail, par ses suggestions qui ont été très précieuses pour structurer et améliorer la qualité des différentes sections malgré son occupation.*

*Nous tenons à remercier notre Co -promotrice **Mme Louanchi Ferial**, professeur à l'ENSSMAL, pour avoir accepté de co-encadrer cette étude.*

*Nous tenons tout particulièrement à remercier vivement **M. Othmani Houcine**, maitre-assistant classe B, d'avoir accepté la présidence du jury.*

*Nous adressons nos vifs remerciements aux **Mme Hammadi Anissa**, chercheur confirmé au CRNA et **M. Zerrouki Mohamed**, maitre-assistant classe A, pour avoir bien accepté d'examiner ce travail.*

Nous remercions s'étendent également à tous les enseignants qui ont contribué à notre formation.

Dédicace

Je dédie ce modeste travail,

À mes chers parents, Aucune dédicace ne saurait exprimer mon respect, mon amour éternel et ma considération pour les sacrifices que vous avez consentie pour mon éducation et mon bien être. Je vous remercie pour tout le soutien et l'amour que vous me portez depuis mon enfance et j'espère que votre bénédiction m'accompagne toujours.

À ma source d'inspiration ma grande sœur, Ikram qui n'a jamais arrêté de m'aider et de m'accompagner dans ce long chemin et son mari.

À mon cher frère Abderrahman et ma belle-sœur Sarah

À ma petite sœur Nourelhouda

À mes nièces Rinad, Ghofran et Tacuba

À mon binôme Abdelmalek Anis et toute sa famille

*À mes chers amis Nourelyakine, Khadidja, Meriem, Sarah, Rania
Ikram, Naziha, Haïthem, Oussama.*

À toute ma promotion de 2015 à 2020,

Anissa

Dédie ce modeste travail accompagné d'un profond amour :

A mes grands-parents Allah yerhamhoum

A mes chers parents pour leur patience, leur amour, leur soutien et leur encouragement. Que dieu les préserve une longue vie pleine de santé et de joie.

A mon frère : Mahmoud et mes sœurs : Nesrine et Serine qui n'ont pas cessés de me conseiller, encourager et soutenir.

A mon neveu : Yahia et ma nièce : Manel

A mon binôme Anissa et toute sa famille

A mes amis : Wafa, Naziha, Akram, Sarah, Rania, Meriem,

Haïthem,

Et a toute la promotion environnement pour tous les moments qu'on a passé

ensemble

Anis

Liste des Figures

Figure I.1. Désintégration d'un noyau instable (Delacroix, et al. 2006).....4

Figure I.2. Exemple de désintégration α (désintégration de Radium) (Nasri, 2010).....5

Figure I.3. Capture électronique (Maalem, 1998).....6

Figure I.4. Emission gamma (Nasri, 2010).....7

Figure I.5. Chaîne des trois familles radioactives naturelles (Nasri, 2010).....9

Figure I.6. Fission atomique (IRSN, 2006).....10

Figure I.7. Localisation des essais nucléaires atmosphériques entre 1945 et 1980 (IRSN,2013)....11

Figure I.8. Le transfert des radionucléides dans l'environnement (Nasri,2010).....15

Figure II.1. Configuration d'une chaîne de spectrométrie gamma (Courtine, 2007).....30

Figure II.2. Schéma de principe d'une structure p-i-n (Courtine, 2007).....32

Figure II.3. Droite d'étalonnage en énergie d'un détecteur.....36

Figure II.4. Schéma de principe d'un spectromètre à dispersion en énergie (Valérie, 2014).....44

Figure II.5. Spectre d'énergie typique en fluorescence X (Mounia, 2011).....45

Figure II.6. Interface de la mise en place et la gestion de la trajectoire.....47

Figure II.7. Fenêtre de calcul de trajectoire.....49

Figure II.8. Fenêtre d'affichage des trajectoires.....49

Figure II.9. Exemple d'une rétrotrajectoire.....50

Figure II.10. Interface d'analyse de grappes des trajectoires.....50

Figure II.11. Fenêtre de calcul des grappes.....51

Figure II.12. Variance spatiale totale.....51

Figure II.13. Exemple d'un centroïde des rétrotrajectoires.....51

Figure III.1. Courbe d'efficacité de deux standards filtres.....52

Figure III.2. Courbe d'efficacité de deux standards de marinelli.....54

Figure III.3. Courbe d'efficacité de deux standards de particules (3g).....55

Figure III.4. Courbes d'efficacité en fonction de masse.....57

Figure III.5. Variation temporelle de la radioactivité artificielle dans les filtres de Fukushima...60

Figure III.6. Rétro-trajectoire moyenne (a) avec l'ensemble des rétrotrajectoires du cluster 1.....63

Figure III.7. Rétro-trajectoire moyenne (a) avec l'ensemble des rétrotrajectoires du cluster 3 (b) lors du passage du nuage de l'accident de Fukushima sur Alger durant la période allant de 05/04/2011 au 14/04/2011.....	63
Figure III.8. Rétro-trajectoire moyenne (a) avec l'ensemble des rétrotrajectoires du cluster 1 (b) lors du passage du nuage de l'accident de Fukushima sur Alger durant la période allant de 14/04/2011 au 18/04/2011.....	64
Figure III.9. Rétro-trajectoire moyenne (a) avec l'ensemble des rétrotrajectoires du cluster 3 (b) lors du passage du nuage de l'accident de Fukushima sur Alger durant la période allant de 18/04/2011 au 26/04/2011.....	64
Figure III.10. Rétrotrajectoire moyenne représentatif lors de l'exposition aux retombées de Fukushima sur Granada ; gauche : 23 au 30 Mars et droite : 30 Mars au 6 Avril (Piñero García et al., 2012).....	65
Figure III.11. Rétrotrajectoire moyenne représentatif lors de l'exposition aux retombées de Fukushima sur Granada ; gauche : 6 au 13 Avril et droite : 13 au 19 Avril (Piñero García et al., 2012).....	66
Figure III.12. Schéma du déplacement du panache radioactif de Fukushima vers le sud-est de l'Espagne (Piñero García et al., 2012).....	66
Figure III.13. Des activités des radionucléides dans les aérosols.....	71
Figure III.14. Les activités spécifiques des radionucléides dans les échantillons de particules atmosphériques.....	74
Figure III.15. Les activités spécifiques des radionucléides dans les échantillons d'eau de pluie.....	76
Figure III.16. Distribution normalisée des concentrations de la composition chimique dans les particules.....	79
Figure III.17. Courbe de la teneur en matière organique des particules atmosphérique.....	80
Figure i. Préleveur d'aérosols.....	III
Figure ii. Récupération d'échantillon de particules.....	III
Figure iii. Echantillon d'aérosol.....	III
Figure iv. Evaporation d'eau de pluie par une plaque chauffante.....	III
Figure v. L'échantillon de particules placé dans le détecteur.....	IV
Figure vi. La chaîne de spectrométrie gamma.....	IV
Figure vii. Four à moufle.....	IV
Figure viii. Capsule.....	V
Figure ix. Balance électrique.....	V
Figure x. Chambre d'EDXRF.....	VI

Figure xi. Graphique linéaire à rayons X.....	VI
Figure xii. Courbe d'efficacité d'un standard de particules (6g).....	VI
Figure xiii. Courbe d'efficacité d'un standard de particules (9g).....	VII
Figure xiv. Courbe d'efficacité d'un standard de particule (12g).....	VII
Figure xv. Spectre de raie d'énergie pour l'échantillon d'aérosols collecté lors de l'accident de Fukushima	VIII
Figure xvi. Spectre de raie d'énergie pour l'échantillon d'aérosols.....	VIII
Figure xvii. Spectre de raie d'énergie pour l'échantillon de particules.....	IX
Figure xviii. Spectre de raie d'énergie pour l'échantillon de d'eau de pluie.....	IX

Liste des Tableaux

Tableau I.1. Les quantités estimées de certains radionucléides rejetés directement dans l’océan Pacifique suite à l’accident de Fukushima (D’après Povinec et al.,2013).....	13
Tableau II.1. Synoptique des prélèvements d’aérosols durant la période de 08 janvier 2020 au 29 avril 2020.....	26
Tableau II.2. Synoptique des prélèvements d’aérosols durant la période allant de 30/3/211 au 22/05/2011.....	27
Tableau II.3. Caractéristiques des détecteurs.....	31
Tableau II.4. Résultat d’étalonnage en énergie.....	36
Tableau II.5. Données relatives aux radionucléides d’intérêts (LHNHB, 2016).....	40
Tableau III.1. Efficacités des radionucléides d’intérêt étudiés dans les filtres.....	53
Tableau III.2. Efficacités des radionucléides d’intérêt étudiés du détecteur 2.....	53
Tableau III.3. Efficacités des radionucléides d’intérêt étudiés du détecteur 3.....	54
Tableau III.4. Efficacités des radionucléides d’intérêt étudiés dans l’eau.....	55
Tableau III.5. Efficacités des radionucléides d’intérêt étudiés dans différentes masses des particules.....	56
Tableau III.6. Les équations utilisées pour le calcul d’efficacité des radionucléides.....	57
Tableau III.7. Efficacités des radionucléides d’intérêts étudiés dans les différentes masses des échantillons des particules.....	58
Tableau III.8. Activités spécifiques des radionucléides dans les aérosols de la période 2011.....	59
Tableau III.9. Donnée référence des Activités spécifiques des radionucléides artificiels trouvées dans les filtres de Fukushima.	61
Tableau III.10. Les valeurs d’analyse par classification statistique non superposé.	62
Tableau III.11. Activités spécifiques des radionucléides spécifiques dans les aérosols.	68
Tableau III.12. Donnée référence des Activités spécifiques des radionucléides spécifiques dans les aérosols	70
Tableau III.13. Activités spécifiques des radionucléides spécifiques dans les particules.....	72

Tableau III.14. Donnée référence des activités spécifique des radionucléides dans les particules.	72
Tableau III.15. Activités spécifiques des radionucléides spécifiques dans les eaux de pluie.	75
Tableau III.16. Composition chimique des particules atmosphériques.....	78
Tableau III.17. La teneur de la matière organique des particules atmosphérique	79
Tableau i : Bruit de Fond.....	I
Tableau ii : Tableau de calcul d'efficacité de détecteur n° 3.....	II

Liste des abréviations

AMD	Activité Minimale Détectable
AMP	Adénosine Monophosphate
ARL	Air Resources Laboratory
AIEA	Agence Internationale d’Energie Atomique
cps	coups par seconde
CRNA	Centre de Recherche Nucléaire Alger
DOI	Différence On Ignition Method
dps	Désintégration par seconde
Ech	Échantillon
ENSSMAL	École Nationale Supérieure de Science de la Mer et Aménagement de Littoral
FLextra	Flexible Trajectory Model
GDAS	Global Data Assimilation System
HCl	Acide Chloridrique
HYSPLIT	Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory
IRSN	Institute de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire
MO	Matière Organique
NCAR	National Centre for Atmospheric Research
NCEP	National Centers for Environmental Prediction
NOAA	National Oceanic and Atmospheric Administration
TMI	Three Mile Island
UNSCEAR	United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation.
URSS	Union des Républiques Socialistes Soviétiques
UTC	Temps Universal Coordonné

Liste des symboles

Symbole		Elément chimique	
%	Pour cent	²²⁸ Ac	Actinium-228
γ	Gamma	Al	Aluminium
α	Alpha	²⁴¹ Am	Américium-241
β	Béta	As	Arsenic
ξ	Efficacité	¹³³ Ba	Baryum-133
ΔN	écart de nombre de coup	⁷ Be	Béryllium-7
a	ans	²¹⁴ Bi	Bismuth-214
A	Activité	Br	Brome
Bf	Bruit de fond	Ca	Calcium
E	Exponentiel	Cl	Chlore
N	Nombre de coup	¹³⁷ Cs	Césium-137
PPb	Partie par billion	⁶⁰ Co	Colbat-60
PPm	partie par million	Cr	Chrome
pH	Potentiel d'hydrogène	Cu	Cuivre
T	Temps	¹⁵² Eu	Europium-152
T _{1/2}	la période	Fe	Fer
Z	nombre atomique	Ga	Gallium
Unité		Hg	Mercure
Bq	Becquerel	¹³¹ I	Iode-131
mBq	Milli Becquerel	⁴⁰ K	Potassium-40
PBq	Péta becquerel	Mg	Magnésium
°c	Celsius	Mn	Manganèse
cm	Centimètre	Mo	Molybdène
km	Kilomètre	Na	Sodium
m ²	Mètre carré	Nb	Niobium
g	Gramme	Ni	Nickel
kg	Kilogramme	P	Phosphore
L	Litre	Pb	Plomb

Liste des symboles

ml	Millilitre	Rb	Rubidium
s	Seconde	²²² Rn	Radon-222
min	minute	S	Soufre
h	Heure	Sc	Scandium
j	Jour	Se	Sélénium
K	Kelvin	Si	Silicium
KeV	Kilo electro volt	Sr	Strontium
v	Volt	Ti	Titane
		²⁰⁸ Tl	Thallium-208
		²³² Th	Thorium-232
		²³⁴ Th	Thorium-234
		²³⁸ U	Uranium
		V	Vanadium
		⁵⁴ Xe	Xénon-54
		Y	Yttrium
		Zn	Zinc
		Zr	Zirconium

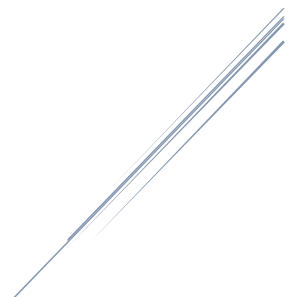
Sommaire

Remerciement.....	i
Dédicace.....	ii
Liste des Figures.....	iv
Liste des Tableaux.....	vii
Liste des abréviations.....	ix
Liste des symbole	x
Sommaire	xii
Introduction Générale	1
Chapitre I : Généralités.....	3
1. Notions de base sur la radioactivité.....	3
1.1 Définitions.....	3
1.1.1 La radioactivité.....	3
1.1.2 Radioélément.....	3
1.1.3 Radioécologie.....	3
1.2 Différents processus d'émission radioactive.....	4
1.2.1 Emission radioactive alpha α	4
1.2.2 Emission radioactive bêta β	5
1.2.3 Emission radioactive gamma γ	6
1.3 Les lois de la radioactivité.....	7
1.3.1 Loi de désintégration radioactive.....	7
1.3.2 La période radioactive $T_{1/2}$	8
1.3.3 L'activité A.....	8
1.4 Les origines des radionucléides.....	8
1.4.1 La radioactivité naturelle.....	8
1.4.2 La radioactivité artificielle.....	10
2. Radioactivité atmosphérique	13
2.1 Les masses d'air et leurs origines.....	13
2.2 Voies de transfert de la radioactivité dans l'atmosphère.....	14

2.3	Les niveaux d'activité des radionucléides dans l'atmosphère.....	16
2.3.1	Radioactivité des aérosols.....	16
2.3.2	Radioactivité des eaux de pluie.....	19
2.4	Impacts des accidents nucléaires sur le transport de la radioactivité.....	19
2.5	Modélisation des rétro trajectoires des masses d'air par le model HYSPLIT.....	21
Chapitre II : Matériel et Méthodes.....		25
1.	Echantillonnage et prélèvement.....	25
1.1	Aérosols.....	25
1.2	Eaux de pluie	28
2.	Conditionnement	28
2.1	Aérosols.....	28
2.2	Eaux de pluie (dépôt sec et/ou humide).....	28
3.	Analyse de la radioactivité des échantillons par spectrométrie gamma.....	29
3.1	Introduction	29
3.2	Principe de la spectrométrie gamma.....	29
3.3	Dispositif d'acquisition et d'analyse.....	30
3.4	Logiciel de Spectrométrie -Génie 2000.....	34
3.5	Conditions expérimentales.....	35
3.6	Analyse des spectres.....	39
3.7	Expression des résultats.....	40
3.7.1	Calcul de l'activité spécifique.....	40
3.7.2	L'incertitude absolue sur l'activité.....	42
3.7.3	Activité minimale détectable.....	42
4.	Techniques complémentaires.....	42
4.1	Composition chimique.....	43
4.1.1	Spectrométrie de la fluorescence X.....	43
4.1.1.2	Principe de l'analyse par XRF.....	46
4.1.2	Analyse de la matière organique dans les particules atmosphériques.....	46
5.	Modélisation des rétrotrajectoires des masses d'air en utilisant le code HYSPLIT....	47
5.1	Configuration de la rétrotrajectoire.....	47

5.2	Exécution du Modèle.....	49
5.2.1	Affichage de la trajectoire.....	49
5.3	Classification statique non superposé (clustering).....	50
Chapitre III : Résultats et Discussion.....		52
1.	Efficacités des différents radionucléides d'intérêt.....	52
1.1	Efficacité filtre.....	52
1.2	Efficacité eau.....	54
1.3	Efficacité des particules.....	55
2.	Passage du nuage radioactif de l'accident de Fukushima à la bande Nord Centre du pays..	58
2.1	Activités spécifiques des radionucléides d'intérêt.....	58
2.2	Parcours des masses d'air.....	61
3.	Surveillance radiologique de compartiment atmosphérique.....	67
3.1	Aérosols.....	67
3.2	Particules.....	71
3.3	Eau de pluie.....	74
4.	Analyses complémentaires de la radioactivité.....	76
4.1	Composition chimique par EDXRF.....	76
4.2	Matière organique.....	79
Conclusion		81
Références bibliographiques.....		83
Annexes.....		I
Résumé.....		XI

Introduction Générale



Introduction

L'environnement dans lequel nous évoluons est naturellement radioactif. Dans l'air, cela est dû principalement au radon, un gaz issu des sols contenant de l'uranium, et à des éléments radioactifs créés en permanence dans la haute atmosphère sous l'effet du rayonnement cosmique. Cette radioactivité naturelle varie localement, selon la nature des sols, les conditions météorologiques et la dispersion des particules par le vent. À ce bruit de fond permanent peut s'ajouter ponctuellement des éléments d'origine artificielle : rejets autorisés d'installations nucléaires, des incidents, des essais nucléaires atmosphériques et des accidents nucléaires.

La surveillance de la radioactivité dans le compartiment atmosphérique a pour objectif d'évaluer l'impact sur l'air ambiant de toutes les activités humaines mettant en œuvre des radionucléides et de déceler et caractériser toute élévation anormale de la radioactivité de l'air consécutive à un accident.

L'air contrairement aux sols et aux eaux, n'a pas de frontières précises, ce qui lui procure une particularité majeure en terme écologique. En effet, les émissions polluantes sont transportées à des distances variables par les mouvements des masses d'air et les nuages (Ramade, 2005).

Lors d'un accident majeur, des produits radioactifs sont rejetés dans l'atmosphère du fait d'une explosion, d'un incendie, ou en raison de leur caractère volatil. Certains comme le krypton-85 et le xénon-133, des gaz nobles sans affinités chimiques, se dilueront dans le grand volume de l'atmosphère et auront peu d'effets. D'autres se fixeront sur des particules fines, des aérosols, ou sur de la vapeur d'eau. Les plus connus sont les isotopes radioactifs le l'iode (iode-131 et 132) et du césium (césium-137 et 134). Ces radioéléments vont se retrouver au sein d'un panache radioactif qui montant en altitude va se transformer en un nuage qui voyagera et se dispersera aux grés des vents et de la météo.

Le 11 mars 2011, un séisme historique, de magnitude 9 sur l'échelle de Richter, survient au nord-est de l'île de Honshu, la plus grande de l'archipel nippon. Suivi d'un tsunami qui a déferlé sur plusieurs centrales de la côte et déclenché l'un des plus graves accidents nucléaires de l'histoire dans la centrale Fukushima Daiichi dont l'évaluation des conséquences n'est pas terminée. Les radionucléides ^{131}I , ^{137}Cs et ^{134}Cs ont été principalement rejetés sous forme gazeuse et des particules se forment dans la troposphère à partir de réacteurs à très haute température. Les interactions entre les radionucléides des produits de fission en suspension dans

l'air avec l'environnement et un transporteur étaient responsables de leur transport et de leur diffusion atmosphérique (Piñero García et al., 2012).

Les retombées de Fukushima se sont déplacées vers le nord-est du Japon sur L'océan Pacifique vers l'océan Arctique, puis la traversée de l'océan Atlantique au-dessus de l'Islande et s'étendant sur le continent européen (IRSN, 2011).

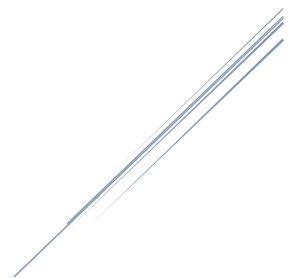
La surveillance radiologique de l'atmosphère est effectuée à travers une station de surveillance continue situé à la terrasse du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA) sur une altitude de 162 m pour la collecte des aérosols et les dépôts secs et/ou humides (eaux de pluie et particules).

L'objectif de ce travail consiste d'une part à une surveillance radiologique courte de l'atmosphère (aérosols, eaux de pluie et particules) du site d'Alger durant le premier trimestre de l'année 2020 et d'autre part, à tracer le parcours des masses d'air qui ont véhiculé la radioactivité artificielle durant l'accident de Fukushima en Mars 2011 en utilisant le code HYSPLIT 4.

Ce mémoire est structuré en trois chapitres :

- Le premier chapitre présente des généralités sur la radioactivité, Les niveaux d'activité des radionucléides dans l'atmosphère, la description des rétro-trajectoires des masses d'air ainsi que le modèle HYSPLIT ;
- Le second chapitre est consacré aux méthodologies relatives à l'échantillonnage, le traitement et l'analyse des échantillons par les différentes techniques ;.
- Le dernier chapitre présente les résultats obtenus ainsi que leurs discussions, suivi par une conclusion générale avec quelques recommandations.

Généralités



Ce chapitre est dédié à la présentation de l'ensemble des définitions sur la radioactivité, son origine, sa filiation ainsi que les notions de bases utilisées dans le domaine de la surveillance de la radioactivité atmosphérique tel que le niveau d'activité de la radioactivité dans l'air, les voies de transfert des radionucléides, l'origine des masses d'air et la modélisation des rétrotrajectoires des masses d'air par le code HYSPLIT.

1. Notions de base sur la radioactivité :

1.1 Définitions

1.1.1 La radioactivité

La radioactivité, appelée aussi désintégration radioactive, est un processus naturel nucléaire spontané qui provient de l'instabilité des noyaux atomiques résultant de l'excès de nucléons (protons et neutrons) qui ont tendance à se transformer et se retrouver à l'état fondamental ou à un état moins instable par un réarrangement de nucléons, en émettant un rayonnement particulaire (α ou β), suivi souvent de rayonnement électromagnétique gamma (γ), après désexcitation du noyau (Cohen, 1997).

1.1.2 Radioélément

Un élément est un type d'atome caractérisé par un numéro atomique Z . Quand on parle d'élément, on ne s'intéresse donc pas au noyau mais au cortège électronique qui définit la chimie de l'élément. Un radioélément est un élément radioactif qui ne possède que des isotopes radioactifs... (Le petit et Granier, 2002).

1.1.3 Radioécologie

La radioécologie a pour rôle de détecter la présence de radionucléides dans l'environnement, de rechercher leurs origines et de comprendre leurs processus de transfert et de concentration dans les écosystèmes.

Son objectif est d'évaluer l'impact de la radioactivité naturelle et artificielle sur l'environnement (impact radioécologique) et sur la population (impact dosimétrique).

Compte tenu de la présence de radionucléides dans tous les écosystèmes et de la complexité des transferts, les radioécologistes travaillent sur les trois milieux principaux de la biosphère : l'aquatique marin, l'aquatique continental et le terrestre.

La radioécologie fournit des données permettant de calculer l'impact dosimétrique. Que les rejets soient contrôlés ou accidentels, elle contribue à apporter des réponses aux questions que peuvent se poser les pouvoirs publics, les industriels du nucléaire, les médias et la population (IRSN, 2013).

1.2 Différents processus d'émission radioactive

Dans la nature, les noyaux peuvent être stables ou instables. Les noyaux instables « noyaux radioactifs » vont tendre vers la stabilité en se désintégrant et en émettant des rayonnements électromagnétiques ou particulaires « alpha, beta, gamma ... » (Delacroix, et al., 2006).

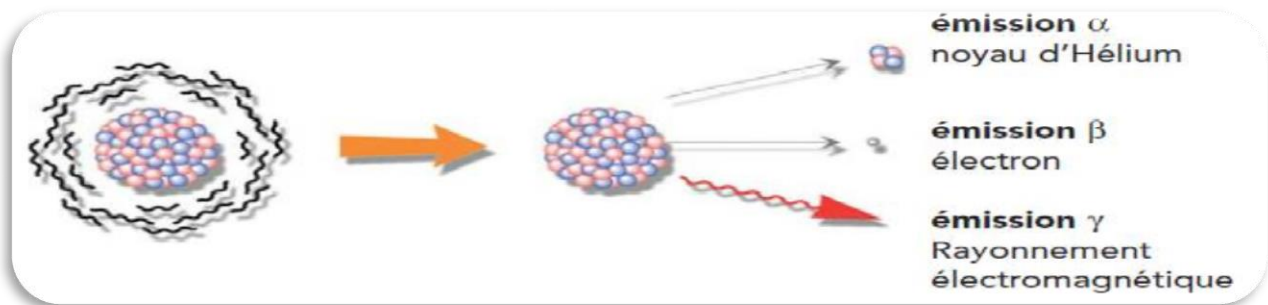


Figure I.1 : Désintégration d'un noyau instable (Delacroix, et al., 2006).

1.2.1 Emission radioactive alpha α

Le rayonnement alpha provient de l'expulsion du noyau radioactif d'une particule alpha, qui est le noyau d'hélium ${}^4_2\text{He}$, ce type d'émission correspond à la désintégration des noyaux lourds, de nombre atomique pour la plupart supérieur à 82 tels Uranium, Plutonium..., pour assurer la stabilité du noyau. Les particules alpha sont complètement arrêtées par quelques centimètres d'air (ou quelques micromètres de matière liquide ou solide) (Henri de choudens, 2001).

La réaction de désintégration est exprimée par cette relation :



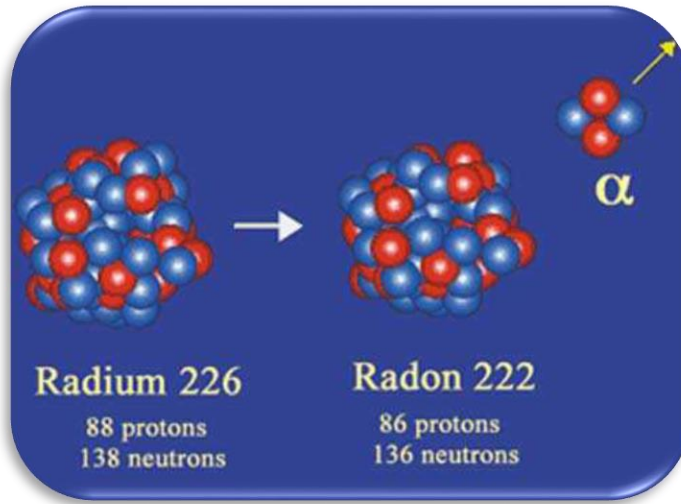


Figure I.2 : Exemple de désintégration α (désintégration de Radium) (Nasri,2010).

1.2.2 Emission radioactive bêta β

Une désintégration conduisant à l'émission d'électrons négatifs dite **désintégration β^-** résulte en fait de la désintégration au sein de noyaux d'un neutron en excès en proton avec l'émission d'un électron porteur d'une charge électrique négative. Ce processus d'émission s'observe pour les radionucléides naturels qu'artificiels (Henri de Choudens, 2001).



Beaucoup plus rare parmi les radioéléments sont ceux qui se désintégrant par émission d'électrons positifs (β^+). Ce type de désintégration est dû à la transformation au sein du noyau d'un proton en neutron avec l'émission d'un électron porteur d'une charge positive. Ce processus d'émission s'observe pour les radionucléides artificiels (HENRI de choudens, 2001).



- **Capture électronique** : Il s'agit d'un déficit neutronique qui est comblé par la capture d'un électron proche du noyau, donc de la couche K, par un proton. Le nombre de masse du nucléide formé reste inchangé A et son numéro atomique diminue d'une unité (Z-1). La réaction globale s'écrit comme suit (Maalem, 1998) :



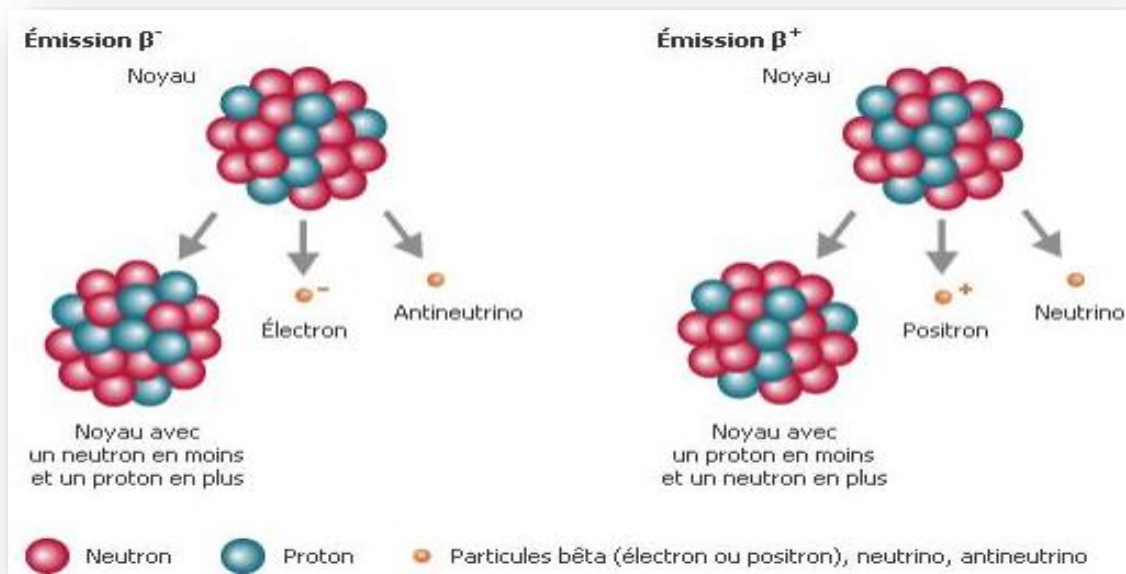


Figure I.3 : Capture électronique (Maalem, 1998).

1.2.3 Emission radioactive gamma γ

Le rayonnement gamma est une onde électromagnétique, elle est obtenue lors du retour du noyau de l'atome fils d'un état excité à un état fondamental ou moins excité.

Avec un excès d'énergie, le noyau va alors émettre plusieurs rayonnements gamma d'énergie déterminée et caractéristique du noyau (HENRI de choudens, 2001).

En règle générale, les rayons gamma sont plus pénétrants que les rayons alpha et beta (il faut quelques centimètres de plomb pour les arrêter) (Ouichaoui, 1992).

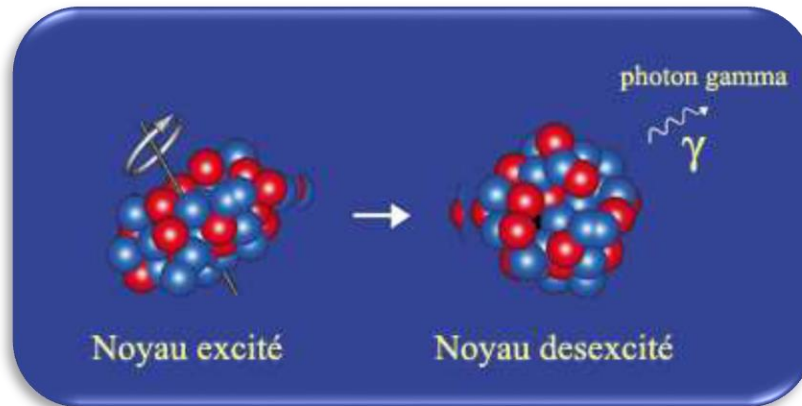


Figure I.4 : Emission gamma (Nasri, 2010).

1.3 Les lois de la radioactivité

1.3.1 Loi de désintégration radioactive

La loi de désintégration des noyaux radioactifs établit par Rutherford et Soddy en grand-bretagne, est très générale et s'applique à n'importe quel type de noyau instable. Le taux de transformation d'un radioélément par les différents processus radioactifs (alpha ou bêta), est proportionnel au nombre d'atome présent (Gambini. et Granier., 2007).

Cette décroissance radioactive suit une loi cinétique de premier ordre et est exprimée comme suit :

$$dN/dt = -\lambda N \quad (1.5)$$

Par intégration, cette relation peut s'écrire :

$$N = N_0 e^{-\lambda t} \quad (1.6)$$

Où :

λ : est la constante de désintégration radioactive.

N : est le nombre de noyaux non désintégrés à l'instant t .

N_0 : est le nombre initial de noyaux à l'instant $t = 0$ (t_0).

t : est le temps de décroissance.

1.3.2 La période radioactive $T_{1/2}$

Représente le temps nécessaire pour que la moitié des atomes radioactifs initialement présents se soit transformée spontanément (Gambini et Granier, 2007).

$T_{1/2}$ est reliée à la constante de désintégration radioactive λ par l'expression :

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (1.7)$$

1.3.3 L'activité A

Permettant de quantifier l'émission d'une source radioactive ; elle correspond à une vitesse de désintégration et est proportionnelle au nombre de noyau instable N. présents à l'instant considéré (t) d'où : (Gambini et Granier., 2007).

$$A(t) = \lambda \cdot N(t) \quad (1.8)$$

En multipliant les deux termes de l'équation (2) par λ , l'expression suivant est obtenue :

$$A(t) = A_0 e^{-\lambda t} \quad (1.9)$$

A_0 : l'activité de l'élément à l'instant initial T_0 .

La nouvelle unité de l'activité est le Becquerel (Bq): 1Bq = 1dps.

dps : désintégration par seconde

1.4 Les origines des radionucléides

La radioactivité actuelle de l'environnement résulte de radionucléides naturels, présents sur la terre depuis son origine, et de radionucléides artificiels introduits par l'homme à partir du milieu du XXe siècle.

1.4.1 La radioactivité naturelle

Environ 70 radionucléides sont présents naturellement dans l'environnement (sols, eau, air et organismes biologiques). Parmi ceux-ci, certains sont des radionucléides primordiaux, c'est-à-dire qu'ils existaient lors de la formation de la Terre, et d'autres cosmogéniques (Picat, et al. 2002).

La plupart des radionucléides naturels rencontrés dans l'environnement ont deux origines principales : Les radionucléides issus des réactions de spallation¹ entre les particules du rayonnement cosmique et les éléments constitutifs de l'atmosphère et de la croûte terrestre. Ces réactions conduisent à la formation de radionucléides cosmogoniques tels ^{14}C , ^3H , ^7Be , ^{22}Na , ^{32}P (Picat, et al. 2002).

- Les radionucléides d'origine tellurique, La croûte terrestre contient naturellement en son sein les descendants des familles de ^{238}U , de ^{235}U et du ^{232}Th (Picat, et al. 2002).

^{238}U représente 2,8 ppm de la lithosphère, tandis que ^{235}U représente 0,7% de la proportion d' ^{238}U soit environ 20 ppb de la lithosphère. Le ^{232}Th représente quant à lui 11 ppm de la lithosphère (Picat, et al. 2002).

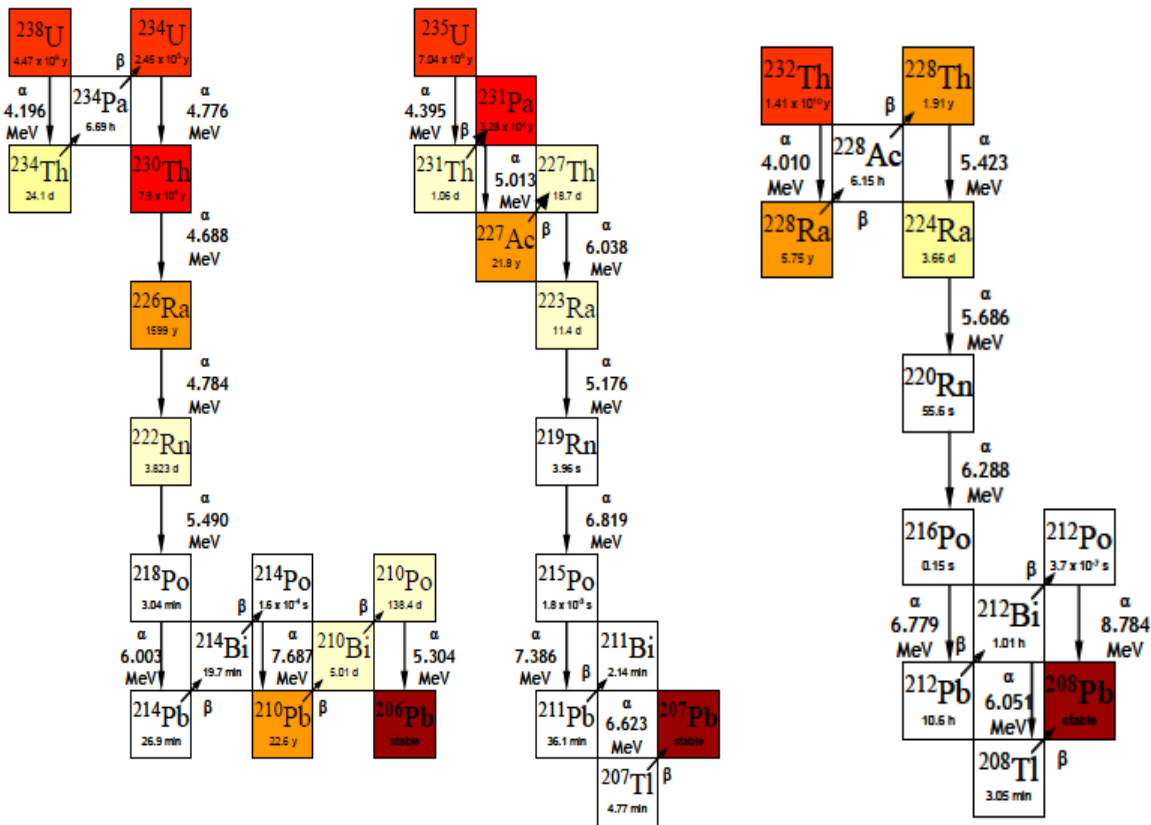


Figure I.5 : Chaîne des trois familles radioactives naturelles (Nasri, 2010).

¹Spallation : Réaction nucléaire où des fragments de décomposition sont émis lors de l'interaction entre un noyau cible et une particule incidente de grande énergie

1.4.2 La radioactivité artificielle

Les radionucléides produits par l'homme ont la particularité essentielle d'avoir été introduits brutalement, à l'échelle du globe, par les essais nucléaires dans l'atmosphère ou à l'échelle locale lors des opérations du cycle du combustible des centrales nucléaires, Les accidents d'installations nucléaires, Les rejets contrôlés de l'industrie nucléaire. Les radionucléides artificiels font contaminer l'environnement (IRSN, 2014).

1.4.2.1 Les essais atmosphériques d'armes nucléaires

Les essais nucléaires atmosphériques sont la principale cause de dispersion de produit de fission dans l'environnement. Le premier d'entre eux a lieu en États-Unis en juillet 1945. Par la suite 543 tirs atmosphériques ont été réalisés par les principales puissances nucléaires (Etats-Unis, Union Soviétique, Royaume-Unis, France, Chine) en différents régions de globe. Le dernier tir nucléaire atmosphérique a été réalisé par la Chine en 1980.

Lors des explosions, des radionucléides (tritium, ruthénium 106, césium 137, strontium 90...) ont été propulsés dans la haute atmosphère puis se sont déposés sur les continents et les océans de manière relativement homogène (IRSN, 2014).

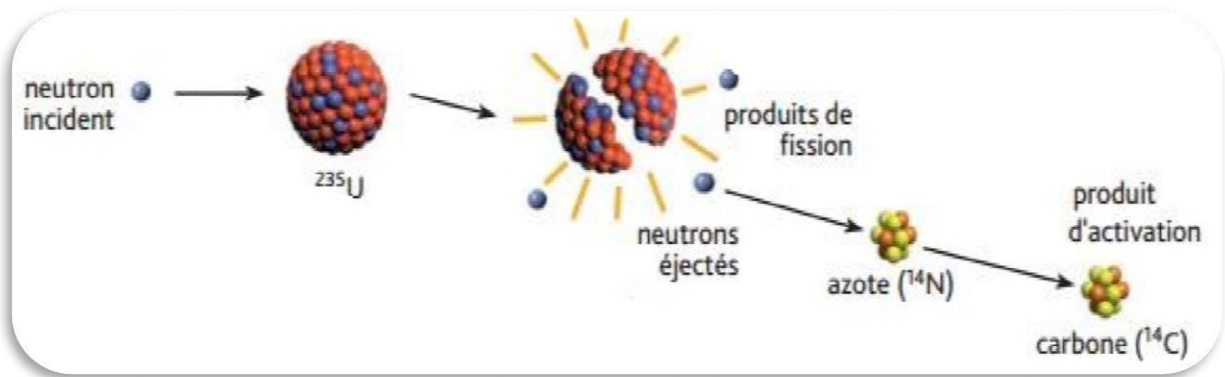


Figure I.6 : Fission atomique (IRSN, 2006).

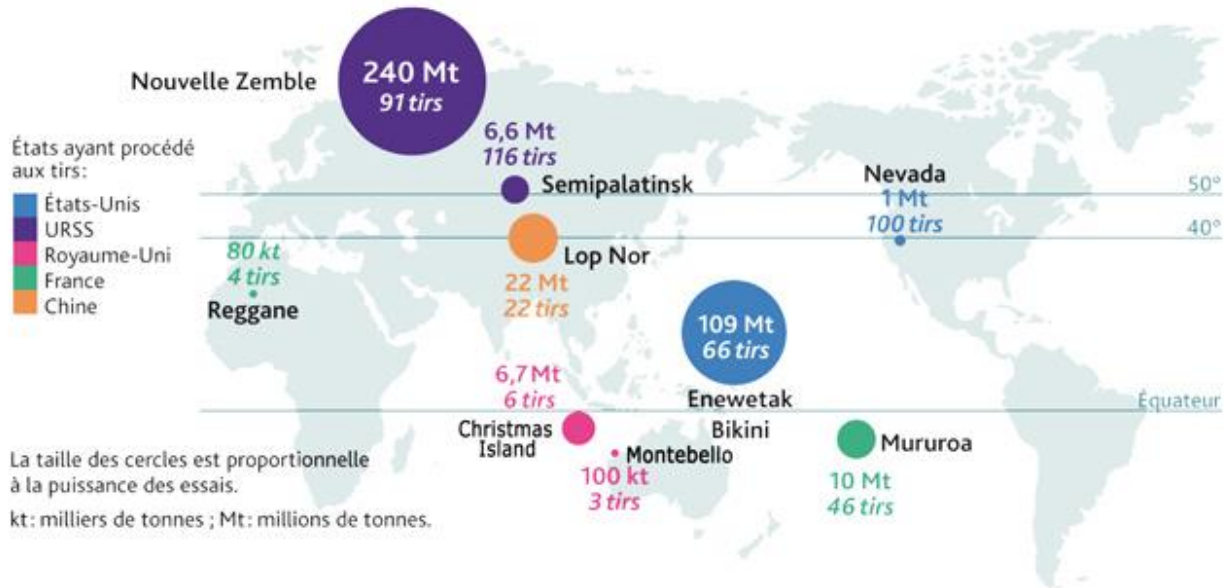


Figure I.7 : Localisation des essais nucléaires atmosphériques entre 1945 et 1980 (IRSN, 2013)

1.4.2.2 Les accidents d'installations nucléaires

Plusieurs accidents sur les installations civiles et militaires impliquant des rejets radioactifs significatifs dans l'environnement se sont produits au cours du siècle dernier.

Parmi les accidents les plus importants dans l'histoire de l'énergie nucléaire, on cite :

- **L'accident de Windscale** : le 7 Octobre 1957 en grande Bretagne : l'explosion d'un container de 250 m³ dans un complexe de production de plutonium a donné lieu à un rejet de $7,4 \cdot 10^{17}$ Bq dans l'atmosphère, dont environ $2,2 \cdot 10^{13}$ Bq en ¹³⁷Cs (Pharabod, 1981).
- **L'accident de Three Mile Island (TMI)** : le 28 Mars 1979 aux USA : est dû à une interruption de la circulation d'eau qui alimente les générateurs de vapeur qui contribue à une explosion au cœur du réacteur, les radionucléides émis sont essentiellement l'iode-131 et le xénon-133 (Parkola, 1989).
- **L'accident de Tchernobyl** : le 26 avril 1986 en URSS (Ukraine), il a été provoqué par l'explosion d'un des quatre réacteurs de la centrale, l'accident a dispersé divers radionucléides dans l'atmosphère, les radionucléides qui sont les plus répandus sont

les gaz rares, l'iode et le césium 137, les quantités présentes en 1997 seraient de $5,6 \cdot 10^{15}$ Bq en ^{137}Cs .

- **L'accident de Fukushima** : Suite au terrible tremblement de terre et au tsunami qui ont frappé le nord-est du Japon le vendredi 11 mars 2011, la centrale nucléaire de Fukushima a connu une défaillance de ses systèmes de refroidissement et plusieurs explosions sur ses réacteurs. De plus, du combustible nucléaire, normalement confiné et protégé dans des piscines d'eau, a été émis un panache radioactif qui s'est libéré dans l'air dans l'atmosphère (IRSN, 2014).

Des rejets significatifs ont eu lieu dans l'atmosphère dès le 12 mars et la semaine suivante les rejets ont été grandement variables avec des augmentations marquées en lien avec des événements particuliers sur chacun des réacteurs : erreurs humain, fuite des enceintes, explosions (UNSCEAR, 2014). Les rejets les plus importants ont eu lieu jusqu'à la fin de mois de mars. Une fois émis dans l'atmosphère, la dispersion des rejets se fait sous l'action des vents. Les rejets qui ont eu lieu entre d'une part le 12 et le 14 mars et d'autre part le 16 et le 19 Mars, ont été dispersés principalement au-dessus de l'océan Pacifique et ont atteint le milieu marin par dépôts secs et humides (pluies).

En l'absence de balises de mesures en mer la quantification de ces dépôts reste difficile. La pollution diffuse des eaux de surface de l'océan par les dépôts atmosphériques s'est produite à des dizaines de kilomètres de la centrale nucléaire. Ainsi, les concentrations mesurées avant le 30 mars à 30 km au large de la centrale accidentée résultent probablement pour l'essentiel des dépôts atmosphériques. Pendant les autres périodes les vents ont dispersé les rejets sur la partie continentale du Japon. Les séquences des dépôts secs et humides ont été complexes (Povinec et al., 2013). Les principaux radionucléides émis dans l'atmosphère ont été des gaz nobles (^{133}Xe), l'iode (^{131}I et ^{133}I), le tellure (^{132}Te), et le césium (^{137}Cs et ^{134}Cs) (Povinec et al., 2013 ; Belharet, 2015).

Tableau I.1 : Les quantités estimées de certains radionucléides rejetés directement dans l’océan Pacifique suite à l’accident de Fukushima (D’après Povinec et al., 2013).

Radionucléide	demi-vie	Rejet atmosphérique (PBq)
¹³¹ I	8.02 jours	159
¹³⁷ Cs	30.2 ans	15,3
¹³⁴ Cs	2.065 ans	17,5

1.4.2.3 Les rejets contrôlés de l'industrie nucléaire

Les installations nucléaires (centrales électronucléaires, usines de traitement des combustibles irradiés...) sont autorisées à rejeter de manière contrôlée des radionucléides dans les fleuves ou la mer (rejets liquides) et dans l'air (rejets gazeux) (IRSN, 2006).

1.4.2.4 La chute de satellites

Plusieurs satellites dotés d’une source d’énergie nucléaire ont chuté. En 21 avril 1964, la rentrée d’un satellite de navigation américain Transit 5-BN-3 (satellite SNAP-9A) s’est désintégrée dans la stratosphère, au-dessus de l’océan indien, a dispersé du plutonium 238 sur l’ensemble du globe (IRSN, 2006).

2. Radioactivité atmosphériques

2.1 Les masses d’air et leurs origines

L’atmosphère peut être décomposée en plusieurs sous-ensembles de volumes à l’intérieur desquels les paramètres physiques sont supposés homogènes. Ces sous-ensembles sont appelés les masses d’air. Leurs caractéristiques sont acquises par l’influence qu’exerce la surface terrestre sur les couches inférieures de l’atmosphère. Pour les météorologues, ces caractéristiques sont en général la température, l’humidité et la pression. L’influence de la surface terrestre se manifestera principalement au travers des différentes émissions de particules dans les basses couches de l’atmosphère. Les caractéristiques d’une masse d’air imprimée par le survol d’une région du globe ne sont pas définitivement acquises et évoluent au cours de ses différents déplacements. Définir son origine peut sembler être une aberration. La circulation des masses d’air à la surface du globe résulte principalement de mouvement à grande échelle de l’atmosphère, ces mouvements tendent

à équilibre les différences de la température et la pression rencontrée. Ainsi, les masses d'air circulent à la surface du globe portées par les vents engendrés par ces différents déséquilibres. En connaissant l'état de l'atmosphère en tout point du globe, il est possible de déterminer le mouvement de ces masses d'air. Les réseaux d'observations des paramètres météorologiques ne permettent pas d'obtenir cette information avec une résolution spatiale suffisante et satisfaisante. En revanche, des modèles de prévisions et d'analyse, offrant une meilleure résolution, peuvent être utilisés, grâce à leurs bases de données, il est possible de retracer le parcours emprunté par les masses d'air et ainsi de leur associer une origine (Piga, 2010).

2.2 Voies de transfert de la radioactivité dans l'atmosphère

Les radionucléides se dispersent dans l'air et dans l'eau, se déposent sur les sols et les sédiments, migrent dans les chaînes alimentaires et peuvent atteindre l'homme. En conséquence, compte tenu de la présence de radionucléides dans tous les écosystèmes, et de la complexité des processus de transfert et de concentration, les mesures de radioactivité sont effectuées dans tous les compartiments de la biosphère.

L'atmosphère est la voie la plus favorable pour la dispersion des radionucléides à cause de ses propriétés, telle que sa composition chimique qui contient des éléments inertes (gaz rare), et des propriétés physiques telle que les conditions météorologiques.

Cette voie concerne essentiellement les aérosols provenant des retombées nucléaires, des rejets d'effluents gazeux, ainsi que les rayonnements naturels qui viennent du sol sous différentes formes.

Le transfert des matières radioactives est principalement régi par deux processus fondamentaux qui sont la dispersion et la diffusion. Lors de la dispersion dans l'atmosphère, des matières radioactives sont transférées vers le milieu terrestre et aquatique, elles peuvent rester fixées en surface ou introduites dans les couches sous-terraines pour arriver aux nappes phréatiques. Ainsi l'érosion des terres contenant des radionucléides entraîne leur transfert vers les eaux de surfaces adjacentes et par utilisation de ces eaux, les radionucléides sont retrouvés à nouveau dans le sol. Après leur transfert dans les différents compartiments d'environnement, ces matières radioactives peuvent se retrouver à nouveau dans l'atmosphère par la remise en suspension (Dziri, 2013).

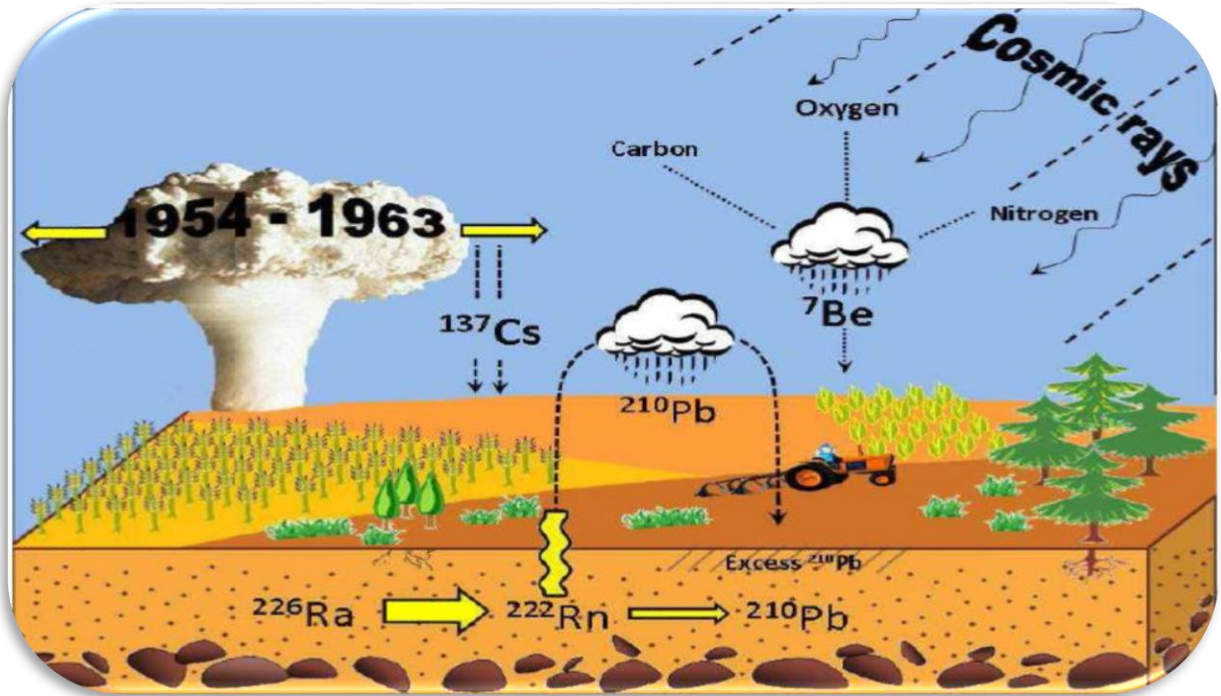


Figure I.8 : Le transfert des radionucléides dans l'environnement (Nasri,2010).

Les matières radioactives transportées dans l'air ont un devenir variable pour :

Les radionucléides à une vie très courte (inférieur à quelques heures), tendent à disparaître par décroissance radioactive le long du trajet du panache.

Quant aux gaz incondensables (gaz rares tels que le Xénon 133), ils restent dans l'atmosphère et leur concentration diminue au cours du temps par dilution sous l'effet de la dispersion atmosphérique et de la période radioactive.

Les radionucléides sous forme d'aérosols (fines particules en suspension) ou de gaz réactif (l'iode gazeux par exemple) se déposent progressivement sur les surfaces au sol : ce sont les retombées radioactives de l'accident qui sont soit des dépôts secs ou des dépôts humides. La prédominance dépôts secs par rapport au dépôt humide est complètement liée à la météorologie. Après dépôt, les radioéléments vont migrer et éventuellement intégrer sélectivement plusieurs matrices.

2.3 Les niveaux d'activité des radionucléides dans l'atmosphère

Les niveaux d'activité dans l'atmosphère des différents radionucléides varient suivant la saison, leur cycle de formation, les rejets liés aux activités anthropogéniques...sur des échelles de temps

assez long. Les niveaux d'activité des radionucléides d'origine naturelle sont relativement constants, pour les radionucléides d'origine anthropique leur niveau d'activité dans l'atmosphère et dans l'environnement en général va dépendre de l'intensité des rejets et de leur période de décroissance radioactive. Ainsi leur niveau d'activité dans les aérosols est maximal dans les premiers temps suivant un rejet et diminue ensuite rapidement après leur introduction (Piga, 2010). D'après le travail de Taeib errahmani et Noureddine, 2016, les concentrations atmosphériques spécifiques de ^7Be et ^{210}Pb mesurées dans la station d'Alger ont été corrélées avec les variables météorologique la température de l'air, les précipitations, l'humidité relative et la vitesse du vent. Il était enregistré une variation saisonnière significative pour le ^7Be , les concentrations étaient maximales à la fin du printemps-été et minimales en hiver ainsi que les valeurs les plus élevées des concentrations d'activité mensuelles moyennes de ^{210}Pb ont été observées ont été plus faibles en hivers.

2.3.1 Radioactivité des aérosols

Inventé par l'Allemand Schmauss en 1920, le mot aérosol désigne la suspension, dans un milieu gazeux (air, dans la plupart des cas), de particules liquides, solides ou les deux, à l'exception des gouttelettes d'eau et des cristaux de glace. Un aérosol atmosphérique n'a pas de composition chimique fixe. Il peut être composé d'un seul ou de plusieurs éléments souvent pas bien définis. Ces derniers varient selon la source d'émission et le processus de leur formation, présentant une vitesse limite de chute négligeable. Dans l'air, dans les conditions normales, cela correspond à des particules de dimensions comprises entre quelques fractions de nanomètre et 100 micromètres (IRSN, 2009).

Les aérosols considérés parmi les polluants atmosphériques majeurs, impliqués dans le réchauffement global de la planète et le trou de la couche d'ozone, les aérosols interviennent dans de nombreux phénomènes naturels, comme la formation des nuages et des précipitations et les échanges océan-atmosphère. Ils sont également les vecteurs de la radioactivité atmosphérique (IRSN, 2009).

2.3.1.1 L'origine de la radioactivité des aérosols

La radioactivité des aérosols est due principalement aux radionucléides des familles naturelles de l'uranium et du thorium ainsi qu'aux descendants du radon.

- Le radon est un gaz radioactif naturel dont les produits de décroissance, également radioactifs, s'agrègent aux poussières présentes dans l'air. Il vient de l'uranium et du thorium naturels présents dans les roches du sous-sol, en quantités variables suivant les conditions météorologiques.

- Le plomb 210 a une durée de vie relativement longue ($T_{1/2} = 22,3$ ans). La plupart du ^{210}Pb est issu de la chaîne radioactive du ^{222}Rn émis par les sols, les sources artificielles (feux de charbon, engrais phosphatés, voitures) étant négligeables (Jaworowski et al., 1980).

Il est transporté par le biais des aérosols et a donc une distribution (en taille et dans l'espace) dépendante des différents processus atmosphériques. Sa concentration au-dessus des continents diminue lorsque l'altitude augmente (Braziewicz et al., 2004). Comme le ^7Be , il peut être utilisé comme traceur dans l'étude des processus environnementaux et dans la comparaison avec les modèles (Robbins, 1978).

Quelques divergences sur les temps de résidence ont été rapportées, allant de quelques jours à un mois suivant la méthode utilisée. Une étude détaillée de Tokieda et al. (1996) confirme des temps de résidence relativement courts pour les aérosols porteurs de ^{210}Pb (4.8 ± 0.3 jours).

On constate généralement que les pluies qui se produisent en été éliminent les particules de l'air et réduisent la concentration de ^{210}Pb dans l'air de surface. La variation de la concentration en ^{210}Pb dans l'air de surface pourrait également être due à la variation de la source des masses d'air. L'intrusion de masses d'air océaniques pourrait entraîner une diminution de la concentration en ^{210}Pb . Alors que l'intrusion de masses d'air continentales pourrait entraîner une augmentation de la concentration en ^{210}Pb (McNeary et Baskaran, 2003).

- Le Béryllium 7, possède un temps de demi vie relativement court ($T_{1/2} = 53.3$ jours) et est principalement d'origine cosmique (Lal and Peters, 1962). Il est créé sous l'effet du rayonnement solaire sur la haute stratosphère. Le ^7Be est un produit de spallation dû aux interactions des rayons cosmiques avec l'azote et l'oxygène atmosphériques.

Il se retrouve "stocké" dans la stratosphère. La diffusion à partir de ce réservoir et le mouvement saisonnier des masses d'air atmosphériques expliquent la variation annuelle : un maximum l'été, un minimum l'hiver.

La dissimulation du ^7Be dans l'atmosphère augmente avec l'altitude par rapport à la surface de la terre. Son taux de production pour une latitude donnée à la surface de la terre ne dépend pas de la longitude. En raison de sa courte demi-vie, la plupart des ^7Be produits dans la stratosphère n'atteignent pas la troposphère, sauf au printemps. Lorsque l'éclaircissement saisonnier de la tropopause a lieu aux latitudes moyennes, ce qui entraîne un échange d'air entre la stratosphère et la troposphère. Dans la plupart des études atmosphériques, la concentration de l'activité ^7Be dans les aérosols ne reste pas constante dans le temps et montre des variations saisonnières dans l'air de surface (Mckay et Baskanran, 2003).

La variation saisonnière de l'activité de la concentration du ^7Be dans l'air de surface a souvent été attribuée à l'influence de la variation du taux d'échange d'air entre la stratosphère et la troposphère. D'autres facteurs basés sur la variation saisonnière sont le taux de mélange vertical dans la troposphère, le taux de transport vers les pôles des masses d'air des latitudes moyennes aux latitudes élevées et le taux de précipitation, ce qui montre l'importance du lessivage de l'aérosol atmosphérique (Feely et al 1989).

- Le césium 137, est un produit de fission de l'Uranium-235 et de l'Uranium-238 d'un grand intérêt notamment à cause de son temps de demi-vie relativement longue (30.2 ans) et de sa grande biodisponibilité.

C'est un composé soluble dans l'eau et son comportement chimique est similaire à celui du potassium. Ainsi, il peut rapidement intégrer les cycles biologiques et s'accumuler dans les écosystèmes terrestres. Il est également connu pour réagir avec les particules et est souvent lié aux argiles et limons fins ainsi qu'à la matière organique de la couche de surface des sols (Arnalds et al., 1989).

Purement artificiel Il s'agit principalement des retombées d'essais nucléaires aériens anciens et de l'accident de Tchernobyl, reste présent dans les mesures réalisées sur les aérosols mais à des niveaux extrêmement bas (entre 0,1 et 0,3 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$).

L'objectif de la surveillance de la radioactivité des aérosols atmosphériques est d'évaluer l'impact sur l'air ambiant de toutes les activités humaines mettant en œuvre des radionucléides et de détecter et caractériser toute élévation anormale de la radioactivité de l'air consécutive à un accident (IRSN, 2006).

2.3.2 Radioactivité des eaux de pluie

Il y a une relation linéaire entre le dépôt des radionucléides sur le sol à partir des retombées globales et le taux de précipitation annuel (Jungck, et al. 2009).

Il est nécessaire de déterminer les radionucléides dans l'eau de pluie pour évaluer la contamination radioactive potentielle de l'environnement et pour déterminer correctement et évaluer l'étendue de la contamination des sols.

Le tritium, un élément chimique gazeux ou liquide, constitue la forme radioactive de l'hydrogène. En raison du rayonnement cosmique, il est présent de façon naturelle dans l'atmosphère, amené dans l'environnement par la pluie. Dans les eaux de surface, sa concentration est de 0,5 Bq/L, selon Reporters. Le tritium est aussi émis dans l'environnement par l'industrie nucléaire (Jungck et al. 2009).

La plupart des techniques existantes reposent sur l'utilisation de grandes quantités d'eau de pluie dans les collecteurs (généralement une surface de collecte de 1 m²) analysé par spectrométrie gamma, soit directement, soit après l'évaporation (Caillet et al, 2001 ; Ioannidou et Papastefanou, 2006).

2.4 Impacts des accidents nucléaires sur le transport de la radioactivité

Depuis 1959, dix accidents nucléaires majeurs ont été signalés par cinq pays. Trois d'entre eux ont eu de graves conséquences négatives sur l'environnement, la santé humaine et l'opinion publique. Chacun de ces trois accidents nucléaires majeurs est différent. Le premier accident nucléaire s'est produit aux États-Unis en 1979 lors de l'exploitation normale d'une centrale nucléaire; le deuxième accident nucléaire s'est produit en Ukraine en 1986 lors d'un essai destiné à évaluer la marge de sécurité du réacteur dans un ensemble de circonstances particulières; et le troisième accident nucléaire s'est produit au Japon en 2011 à la suite d'un tremblement de terre de magnitude 9 et d'un tsunami (Pedraza, 2013).

À la suite de l'accident nucléaire de Tchernobyl, plus de 150000 km² en Biélorussie, en Russie et L'Ukraine a été contaminée et s'étend au nord du site de la centrale nucléaire jusqu'à 500 km. Une zone de 30 km autour du site de la centrale nucléaire a été considérée comme « une zone d'exclusion » et il est essentiellement inhabité. Les retombées radioactives dispersées sur une grande partie du nord l'hémisphère via les régimes de vent et de tempête, mais les quantités

dispersées étaient dans de nombreux cas insignifiant. Le césium et d'autres isotopes radioactifs ont été soufflés par le vent vers le nord dans la Suède et la Finlande et sur d'autres parties de l'Europe et l'hémisphère nord. Pendant les trois premières semaines après l'accident, le niveau de rayonnement dans l'atmosphère à plusieurs endroits dans le monde entier était au-dessus de la normale; mais ces niveaux ont rapidement reculé, réduisant la conséquence de l'accident nucléaire de Tchernobyl pour de nombreux pays (Pedraza, 2013). L'accident nucléaire de Fukushima Daiichi, considéré comme le deuxième grand accident nucléaire mondial après Tchernobyl, et le troisième accident majeur qui a touché le monde de l'industrie nucléaire au cours des trente-cinq dernières années. L'accident est le résultat d'une grave catastrophe climatique (qui tue environ 20000 personnes) ce qui n'était pas prévu qui pourrait arriver par le constructeur de la centrale nucléaire, mettant hors service des composants importants du système de sûreté de la plante (Pedraza, 2013).

D'après Didier Champion, directeur de la crise à l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire français (IRSN), l'impact de Fukushima n'a été important qu'au Japon. Dans le reste du monde, cet impact a été plutôt faible et surtout, transitoire, A partir du mois de mai 2011, les effets de Fukushima avaient, à l'échelle planétaire, quasiment disparus. Le nuage s'est confondu avec les traces laissées aux quatre coins du monde par les différents essais nucléaires.

Dans ces premiers mois, le nuage radioactif a essentiellement affecté l'hémisphère nord. L'Amérique du Nord a été le premier continent touché par l'impact de l'accident, à partir du 16 mars. Les concentrations étaient alors à peine plus élevées qu'en France, soit de l'ordre de quelques milli becquerels par mètre cube d'air. Le césium y a quasiment disparu, et ce à partir du mois d'avril 2011. Du moins il n'est pas en quantité suffisante pour être présent dans les relevés des autorités de sûreté nucléaire. L'Europe du Nord, touchée à partir du 23 mars, est dans une situation similaire. L'Asie a été touchée plus tard, le nuage étant parti d'abord du côté de l'océan Pacifique pour arriver en dernier sur le continent asiatique (Didier, 2012).

Les rejets d'iodes radioactifs dans l'atmosphère ont atteint 408 millions de milliards de becquerels, un chiffre dix fois inférieur à celui de l'explosion de la centrale de Tchernobyl en 1986. Ces iodes ont une "période radioactive" très courte, et ont représenté un risque pour l'environnement durant les premières semaines après l'accident (Didier, 2012).

Mais les trois réacteurs accidentés et les explosions d'hydrogène dans les bâtiments de la centrale ont aussi libéré de grandes quantités de césium radioactif, à la demi vie beaucoup plus longue : 58 millions de milliards de becquerels (environ trois fois moins que pour Tchernobyl). Le césium 137 ayant une période radioactive de 30 ans, il reste 98% après un an de sa radioactivité initiale dans l'environnement, un taux qui sera encore de 81% en 2020 (Didier, 2012).

Au total, sur environ 24.000 km² du territoire japonais contaminés par le césium 137, seuls 600 km² dépasseraient en mars 2013 le seuil des 600.000 becquerels par m², estime l'IRSN. "A niveau de contamination égal, les superficies concernées au Japon sont nettement inférieures à celles des territoires contaminés autour de Tchernobyl, ce qui s'explique notamment par le fait qu'une part importante des rejets (...) s'est dispersée au-dessus du Pacifique", selon un bilan de l'IRSN. Il existe toutefois des terres contaminées en "taches de léopard" jusqu'à 250 km de distance de la centrale, avec des "points chauds" extrêmement localisés liés à l'accumulation de dépôts radioactifs par les pluies et le ruissellement.

2.5 Modélisation des rétro trajectoire des masses d'air par le model HYSPLIT

C'est le parcours le plus probable d'une masse d'air avant son arrivée en un point (x,y,z), représenté par une trajectoire unique (Piga, 2010).

L'analyse de la rétrotrajectoire est un outil scientifique couramment utilisé dans la recherche de la qualité de l'air, dans l'étude des modèles des flux atmosphériques, appliquée dans de nombreuses études de cas et à court terme pour décrire des événements de plusieurs heures ou jours, et pour caractériser les modèles climatiques lorsqu'il est compilé sur plusieurs saisons ou années (Bourcier, 2009).

Les masses d'air contiennent souvent des informations sur le vent et sur les données thermodynamiques.

Les rétrotrajectoires sont généralement estimées à partir de données archivées, et la pression du vent représentent le trajet d'écoulement tridimensionnel approximatif d'une parcelle d'air. L'analyse de la rétrotrajectoire permet d'identifier les régions géographiques sources de divers polluants atmosphériques électeurs. La précision de l'analyse des trajectoires est en fonction de la résolution des données du champ de vent, les méthodes de calcul, et les caractéristiques de la météorologie associée (Bourcier, 2009).

Et Pour identifier les sources potentielles de polluants atmosphériques impactant une région donnée, plusieurs outils de modélisation peuvent être utilisés. Plusieurs outils ont été développés pour la modélisation et l'analyse des phénomènes de transport atmosphérique.

Les modèles de trajectoires sont des modèles numériques qui permettent d'estimer le chemin d'une parcelle d'air et d'identifier son origine en suivant cette parcelle dans l'espace et dans le temps, en partant d'un point donné (récepteur). Ces modèles prennent des inputs des champs météorologiques afin de calculer les rétrotrajectoires qu'elles sont définies comme le parcours le plus probable d'une masse d'air avant d'arriver à un point donné dans une certaine période de temps et à une altitude donnée au départ ou à l'arrivée (Jaidan, 2018).

Ils sont robustes pour étudier le transport des polluants atmosphériques à courte, moyenne et longue distance. Depuis leur apparition jusqu'à aujourd'hui, ces modèles sont considérablement utilisés par la communauté scientifique et largement cités dans la littérature. Parmi les modèles les plus utilisés, on trouve les modèles HYSPLIT (Draxler, 2010; Stein et al. 2015), FLEXTRA (FLEXible TRAjectory model), le modèle national italien de qualité de l'air MINNI, un ensemble de procédures a été mis en place sous le nom de M-TraCE (module MINNI pour le calcul et l'élaboration statistique des trajectoires), LACYTRAJ et METEX...ect.

Le modèle HYSPLIT est un système complet permettant de calculer des trajectoires simples de masses d'air, ainsi que des simulations complexes de transport, de dispersion, de transformation chimique et de dépôt de polluants gazeux ou particulaires. HYSPLIT continue d'être l'un des modèles de transport et de dispersion atmosphérique les plus largement utilisés dans la communauté des sciences de l'atmosphère (Pastuszka et al., 2010). La NOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration) et le ARL (Air Resources Laboratory) sont les deux organismes qui ont développé le modèle HYSPLIT_4.

La méthode de calcul du modèle est un hybride entre les approches eulérienne et lagrangienne.

- **Model Lagrangien** : Son principe est la simulation des variations de la composition chimique d'une masse d'air quand elle est diffusée dans l'atmosphère. Dans ce model on calcule les concentrations par addition de la contribution de chaque polluant « bouffée » qui subit la diffusion ou l'advection via la cellule de la grille représentée par sa trajectoire (Cheick, 2017).

- **Modèle eulérien :** Le champ modélisé est défini dans l'espace. Ce domaine est généralement discrétisé en cellules (maille), et on simule les variations de la composition chimique dans ces cellules différentes. L'évolution des concentrations en fonction du temps est simulée par ce modèle sur tout l'espace (domaine) considéré. Le modèle calcule les concentrations pour chaque cellule de la grille par utilisations de l'intégration des flux de polluants à chaque interface de cellule de la grille à cause d'advection et de diffusion (Cheick, 2017).

Les concentrations sont calculées sur une grille fixe alors que les calculs de diffusion et d'advection sont effectués dans un cadre lagrangien. HYSPLIT a évolué pour plus de 30 ans, dès l'estimation de trajectoires faciles simplifiées fondée sur des remarques par radiosonde jusqu'à un système qui pris en considération des polluants variés en interaction transportés, dispersés et déposés sur des échelles locales à globales (Stein et al. 2015).

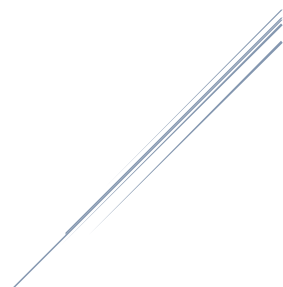
Le modèle utilise des données météorologiques maillée sur l'une des trois projections cartographiques appropriées (Lambert, Polar et Mercator). Le modèle de dispersion exige des domaines de données météorologiques qui peuvent être acquis depuis la sorties des modèles d'archives (Archives trajectoires) ou de prévision (Forcast trajectories). Pour l'entrée du modèle HYSPLIT, les données doivent être formatées. En plus, l'existence d'un système d'interpolation interne de coordonnées dans la structure profonde du modèle lui donne l'aptitude d'utiliser diverses sources de données météorologiques et de les ajuster à sa grille interne. Le modèle HYSPLIT peut calculer les trajectoires des particules qui se situe à une certaine altitude, et cela jusqu'à trois différentes altitudes (Draxler et Hess, 1997).

Les équations de modélisation de l'atmosphère sont converties en un ensemble d'algorithmes informatiques écrits en codes Fortran, pour former le système logiciel HYSPLIT qui tourne en utilisant en entrée les sorties maillées d'un modèle de données météorologique d'archive ou de prévision (Draxler et Hess, 1997).

Le HYSPLIT est basé sur l'idée que les particules polluantes dans l'atmosphère se déplacent selon des trajectoires déterminées par le champ de vent, la flottabilité et les effets de la turbulence, il donne des estimations rapides des voies de dépression atmosphérique et leurs sources. Il offre également un mélange d'une trajectoire verticale et horizontale pour déterminé les niveaux de concentration (Draxler, 2018).

Plusieurs raisons expliquent la large utilisation des modèles. La raison principale est qu'ils sont disponibles gratuitement et s'avèrent extrêmement faciles à appliquer puisqu'on considère un site de référence où les trajectoires d'arrivée ou de départ sont calculées. En outre, les besoins en matière de saisie sont minimes. Un autre avantage est leur extrême polyvalence, puisqu'ils peuvent être utilisés non seulement pour fournir des informations sur les trajectoires de l'air mais aussi, avec des variables supplémentaires telles que la température, l'humidité ou la concentration, pour donner des informations sur les sources. En outre, les modèles sont soumis à des processus de calibrage et d'évaluation et semblent avoir une capacité similaire à simuler les trajectoires de l'air, les différences de formulation jouant un rôle secondaire. Les limites inhérentes aux modèles sont les mêmes que celles des prévisions météorologiques classiques, car leur précision ne peut être affectée que lorsque les variables d'entrée sont rares. Des méthodes de visualisation des incertitudes ont été proposées, et leurs résultats doivent être interprétés en appliquant les connaissances de la météorologie, de la localisation et de la nature des sources de pollution possibles.

Matériels et Méthodes



Il est nécessaire de surveiller et d'étudier la concentration et le devenir des substances radioactives dans l'environnement, afin de connaître leur impact éventuel sur la santé de l'homme, l'environnement et sur les ressources d'intérêt économique (notamment l'eau et l'agriculture). La surveillance radiologique s'effectue donc sur l'ensemble des compartiments de l'environnement : l'air, les eaux, les sols, les compartiments biologiques (faune, flore) et la chaîne alimentaire.

Dans notre étude nous nous intéressons à la surveillance du compartiment atmosphérique qui inclue les aérosols atmosphériques, ainsi que les retombées totales (dépôt sec et dépôts humides).

1. Echantillonnage et prélèvement

1.1 Aérosols

Les aérosols jouent un rôle important dans le transport des polluants, en particulier des substances radioactives. Ils peuvent être inhalés par l'homme et constituent ainsi une voie d'atteinte à surveiller.

La surveillance permanente de la radioactivité des aérosols atmosphériques est assurée par un dispositif de prélèvement d'air sur filtre fixe, installé à la terrasse du 7^{ème} étage du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA) de marque Hi-Environmental Products d'un débit moyen de 67.9 m³/h.

L'appareillage est constitué d'un système d'aspiration, d'un compteur volumétrique et d'un manchon porte-filtre protégé des précipitations par un capot en aluminium.

La forme de capot permet de protéger le filtre contre les précipitations, de prélever en modifiant le moins possible la distribution granulométrique de l'aérosol. Il permet également de conduire les particules aspirées jusqu'au filtre avec un minimum de perte et d'empêcher au maximum la pénétration de l'eau de pluie, des insectes et des débris végétaux.

Au total, le laboratoire de l'environnement a prélevé huit filtres entre la période allant de 01 janvier 2020 au 29 avril 2020. Pour chaque filtre le volume d'air varie entre 11557,3 et 35153,2 m³, et la durée de prélèvement va de 7 à 15 jours (Tabl.II.1).

Les prélèvements ont été effectués par des filtres en papier de microfibres de verre de haute pureté, de dimension 20.32*25.4 cm et de porosité qui varie entre 20 et 25 μm , ils retiennent les poussières et les aérosols en suspension dans l'air.

Les principales étapes de prélèvement des aérosols, qui sont décrites dans la norme NF M 60-760 (Mesure de la radioactivité dans l'environnement –Air) sont :

- La mise en place et le retrait du filtre qui peut s'avérer délicate étant donné la fragilité de la matrice ;
- La mise en marche et l'arrêt du préleveur ;
- Les formalités de transmission (fiche d'identification du prélèvement, renseignements météorologiques, état du filtre lors du retrait, remarques éventuelles).

Tableau II.1 : *Synoptique des prélèvements d'aérosols durant la période de 08 janvier 2020 au 29 avril 2020*

Numéro de filtre	Début de prélèvement	Fin de prélèvement	Temps de collecte (h)	Volume d'air (m^3)
F1	08 / 01 / 20	21/01/20	18643	21659,9
F2	21 / 01 / 20	11 / 02 / 20	30261	35153,2
F3	11 / 02 / 20	27 / 02 / 20	23227,1	26982,1
F4	01 / 03 / 20	08 / 03 / 20	9948,9	11557,3
F5	08 / 03 / 20	15 / 03 / 20	10365,6	12041,4
F6	15 / 03 / 20	24 / 03 / 20	12670,7	14719,1
F7	07 / 04 / 20	19 / 04 / 20	17305,2	20102,9
F8	19 / 04 / 20	29 / 04 / 20	14476	16816,3

F : Filtre

Cette station a mesuré auparavant des traces de radioéléments artificiels issus de l'accident de Fukushima en 2011.

Dans ce travail, nous avons fait appel aux filtres prélevés et analysés durant la période de l'évènement afin d'étudier l'origine des masses d'air véhiculant ces radioéléments artificiels vers l'Algérie en utilisant le code HYSPLIT (Tabl.II.2).

Tableau II.2 : *Synoptique des prélèvements d'aérosols durant la période allant de 30/3/211 au 22/05/2011.*

Code ech	Coordonnées	Altitud es (m)	Début de prélèvement	Fin de prélèvement	Volume d'air(m ³)	Observations Météorologiques
FK1	N36°46'47'' E003°03'9,7''	158 (terrass e 1 ^{er} étage)	30/3/2011 à 14h30	4/4/2011 A 11h00	7910,35	Ciel dégagé Ni pluie, ni vent
FK2	N36°46'47,7'' E003°03'8,6''	188 (Terras se 7 ^{ème} étage)	5/4/2011 à 11h30	14/4/2011 à 10h30	14598,5	Ciel dégagé Ni pluie, ni vent
FK3	N36°46'47,7'' E003°03'8,6''	188	14/4/2011 à 10h30	18/4/2011 à 15h30	6857,9	Vent faible Humide en début et fin de journée
FK4	N36°46'47,7'' E003°03'8,6''	188	18/4/2011 à 15h30	26/4/2011 à 15h	12975,69	Temps ensoleillé 2,3 jours pluie
FK5	N36°46'47'' E003°03'9,7''	158	26/4/2011 à 15h	12/5/2011 à 15h30	26107,55	Ciel nuageux Beaucoup De pluie et de vent
FK6	N36°46'47'' E003°03'9,7''	158	12/5/2011 à 15h30	18/5/2011 à 15h30	11380,04	Ciel nuageux Beaucoup De pluie et de vent
FK7	N36°46'47'' E003°03'9,7''	158	18/5/2011 à 15h30	22/5/2011 à 15h00	4902,38	Ciel nuageux Beaucoup De pluie et de vent

FK : Filtre Fukushima

1.2 Eaux de pluie

Le dépôt total (dépôt sec et/ ou dépôt humide) est prélevé par l'équipe de laboratoire de l'environnement avec un fréquence mensuellement en utilisant un collecteur ouvert de surface 1 m², à une hauteur de 1 m, installé à la terrasse du 4ème étage du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA) qui recueille à la fois la pluie et les particules).

Le prélèvement se fait dans une bouteille en plastique.

Dans le cas, où il y a uniquement le dépôt sec, sa récupération se fait par le nettoyage de la table de collecte avec l'eau acidifiée.

2 Conditionnement

2.1 Aérosols

Après retrait le filtre du porte-filtre, il est plié de telle sorte que ce dernier occupe la surface du détecteur dans le but d'avoir la meilleure efficacité de comptage, et il est ensuite placé dans un sachet en plastique sur lequel est portés les renseignements nécessaires (Numéro de filtre, date début de prélèvement, date fin de prélèvement).

L'échantillon est alors passé directement au comptage par spectrométrie gamma dans un détecteur Ge HP pendant un temps d'acquisition de 24 h.

2.2 Eaux de pluie (dépôt sec et/ou humide)

Une fois au laboratoire, nous laissons l'échantillon de dépôt total se décanter pendant un certain temps pour séparer l'eau de pluie et les particules. Après ;

- Une quantité d'échantillon d'eau de pluie est soigneusement évaporée à l'aide d'une plaque chauffante pour concentrer le volume et enrichir l'échantillon pour qu'il soit suffisamment sensible, le résidu restant (1L) est ensuite conditionné dans une géométrie de comptage adaptée à la mesure par spectrométrie gamma qui dure 24 heures.
- Le maximum de particules récupéré est conditionné par l'équipe de laboratoire avant la mesure de la radioactivité par les étapes suivantes:
 - ✓ Sécher dans une étuve à 80°C pendant 48h.
 - ✓ Bien broyer à l'aide d'un mortier manuel pour le transformer en forme de poudre homogène.
 - ✓ Mettre dans un flacon en plastique pour commencer le comptage par spectrométrie gamma qui dure 24h.

3. Analyse de la radioactivité des échantillons par spectrométrie gamma

La technique de mesure par spectrométrie gamma passe par des étapes à savoir :

- La préparation de l'échantillon à mesurer ;

- Calibration en énergie et en efficacité de la chaîne de spectrométrie gamma ;
- L'acquisition de bruit de fond ;
- L'acquisition de l'échantillon ;
- La recherche des pics ;
- L'identification des radionucléides ;
- Le calcul de l'activité et leur incertitude.

3.1 Introduction

La spectrométrie gamma est une technique d'analyse nucléaire non destructive, multi élémentaire, très sensible et précise, qui permet, d'une part, de mesurer exactement l'énergie des photons gamma émis et, d'autre part, d'en comptabiliser le nombre pendant une certaine durée ; nous pouvons alors identifier les radioéléments présents dans l'échantillon à analyser, déterminer leur activité et contrôler la contamination radioactive dans divers produits.

Elle offre un outil d'analyse performant qui permet en une seule mesure et avec une préparation simple de l'échantillon d'identifier les éléments radioactifs présents. Elle est basée sur l'utilisation des détecteurs à semi-conducteur à base germanium hyper pur Ge Hp.

3.2 Principe de la spectrométrie gamma

Le principe de la détection est basé sur l'interaction entre les photons gamma et la matière du détecteur (géranium hyper pure) générant la production d'un signal électrique sous forme d'impulsion. Pour fonctionner le détecteur doit être polarisé par une alimentation haute tension, l'impulsion de courant crée est transformée en impulsion de tension par le préamplificateur et amplifiée par l'amplificateur. Elle est ensuite convertie numériquement par le convertisseur analogique numérique puis rangée dans la mémoire de l'analyseur multicanaux. L'ensemble des éléments qui composent une chaîne de détection et qui contribuent à la proportionnalité entre l'énergie cédée et l'impulsion finale doivent être remarquablement stables et linéaire (Bramki, 2018).

La spectrométrie gamma permet de réaliser une analyse quantitative et qualitative des éléments radioactifs présents dans l'échantillon selon le but recherché.

- L'analyse qualitative repose principalement sur l'indentification des radioéléments présents dans l'échantillon, ceci est possible grâce à la mesure de l'énergie du rayonnement gamma émis par le radioélément.

- L'analyse quantitative permet en plus de l'identification des radioéléments, la détermination de l'activité spécifique, qui est basée sur l'intensité de l'émission du rayonnement gamma de chaque radioélément.

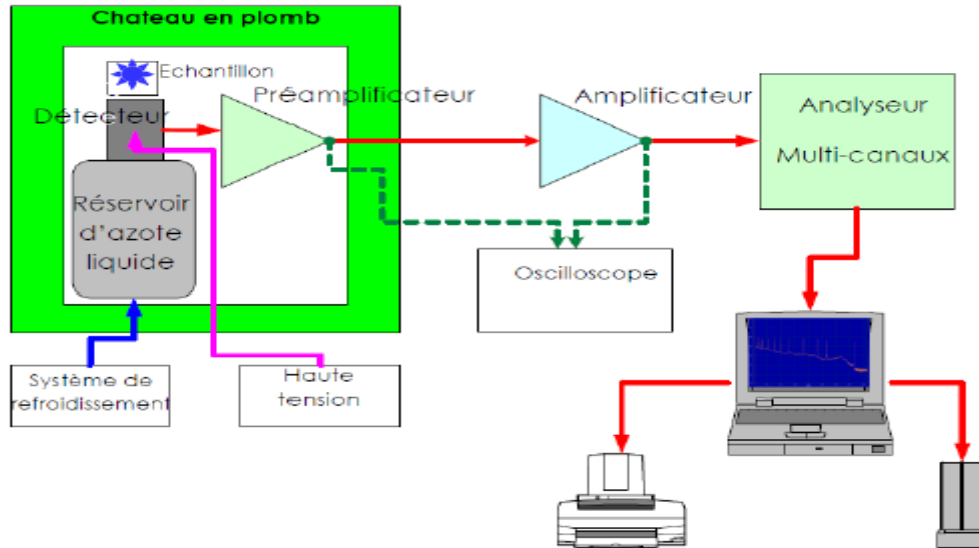


Figure II.1 : Configuration d'une chaîne de spectrométrie gamma (Courtine, 2007).

3.3 Dispositif d'acquisition et d'analyse

L'ensemble de détection permet de mesurer un signal issu de l'interaction des rayonnements ionisants avec le cristal de germanium, de l'amplifier et de le mettre en forme en vue d'une analyse ultérieure. La chaîne d'acquisition est composée de cinq parties : le détecteur (dont la partie sensible est un cristal de germanium), le préamplificateur, l'amplificateur, le convertisseur analogique-numérique (ADC) ainsi que l'analyseur multicanaux (MCA).

➤ Structure du détecteur Ge-HP:

Les mesures ont été effectuées à l'aide d'un détecteur à semi-conducteur de type germanium hyper pur Ge(Hp) de type p, d'une géométrie coaxiale. Caractérisé par un excellent pouvoir de résolution et permettant d'atteindre un rendement de détection acceptable. Les caractéristiques de détecteur utilisé sont résumées dans le tableau II.3.

Tableau II.3 : Caractéristiques des détecteurs.

Caractéristiques de détecteur	Détecteur
Efficacité relative (%)	40
Tension de polarisation (Volt)	3500

Le détecteur est constitué d'un cristal de germanium, d'une structure en plomb permettant d'atténuer le bruit extérieur (rayonnement cosmique...), d'une structure en cuivre (cage de Faraday) et d'un cryostat permettant de baisser la température du cristal et donc son agitation thermique ce qui limite le bruit et stabilise le cristal (Courtine, 2007).

L'isolant sert de protection lors du montage du cristal à l'intérieur du support et évite une éventuelle contamination du cristal par le support en cuivre. Le fond du cristal est relié à un contact, entouré d'un isolant, servant à amener la haute tension pour polariser le cristal (Courtine, 2007).

L'ensemble est maintenu sous vide pour assurer l'isolation thermique grâce à une enveloppe externe faite d'un alliage à forte teneur en aluminium (kryal) (Courtine, 2007).

Un photon issu de l'élément radioactif interagit avec le cristal de germanium par effet photoélectrique, Compton ou par création de paires ce qui aura pour effet de céder de l'énergie aux électrons du cristal, ils peuvent ainsi passer le gap énergétique et être accélérés par une haute tension ce qui fournit un courant dont la quantité de charge obtenue est proportionnelle à l'énergie déposée dans le cristal par le rayonnement (Courtine, 2007).

➤ **Le cristal**

Le cristal de germanium présente une structure p-i-n (Fig.II.2).

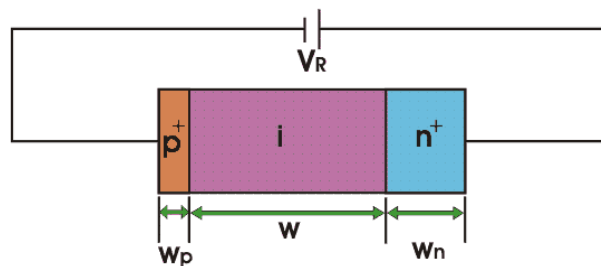


Figure II.2 : Schéma de principe d'une structure p-i-n (Courtine, 2007).

Le cristal est soumis à une tension inverse créant un champ électrique à l'intérieur de la zone intrinsèque (I). Lorsqu'un photon arrive à l'intérieur de cette zone, il interagit avec le germanium en produisant des paires électron-trou. Les porteurs de charge ainsi créés se déplacent le long des lignes de champ électrique jusqu'aux régions dopées P et N. Le nombre de paires électron-trou est proportionnel à l'énergie déposée par le photon incident. Le temps de collection de charge est une fonction de la géométrie du détecteur, de la haute tension appliquée ainsi que de la nature du cristal (Lutz, 2001).

C'est un facteur qui limite l'efficacité du détecteur.

De manière à améliorer la résolution du détecteur, celui-ci doit être refroidi, ce qui diminue l'agitation thermique des porteurs de charges. Ceci est assuré par un Dewar (réservoir) à la température de l'azote liquide, soit 77 K (Courtine, 2007).

- **Remplissage d'azote**

L'azote liquide est obligatoire pour le fonctionnement de détecteur, il sert au refroidissement du système, il se fait chaque 15 jour.

- **Blindage "Shielding"**

Afin de minimiser au maximum le bruit de fond dû aux différents rayonnements Gamma ou X (naturels ou artificiels) venants de l'entourage de la chaîne de mesure, nous avons utilisé un blindage en plomb qui protège le détecteur et l'échantillon.

- **Alimentation haute tension**

La haute tension (dynamique de 0 à ± 5 ou 6 KeV) permet de polariser le semi-conducteur afin d'obtenir une zone désertée importante dans le cristal Ge HP (Le petit et Granier, 2002).

Cette alimentation doit être réglable à la tension imposée par le détecteur, elle doit supporter, sans chute de tension, le courant débité par le détecteur et elle doit être stable.

- **Alimentation basse tension**

Elle fournit les basses tensions continues (± 6 , ± 12 , et ± 24 v) nécessaires à la polarisation des autres éléments électroniques de la chaîne (Le petit et Granier, 2002).

- **L'électronique associée**

La chaîne électronique associée permet de réaliser le traitement du signal. Elle se compose du préamplificateur, de l'amplificateur, du convertisseur analogique-numérique et de l'analyseur multicanal. La fonction de ce dernier est d'additionner les impulsions (précédemment codées) de même amplitude dans un canal. On obtient ainsi un spectre qui représente le nombre de coups reçus en fonction de l'énergie. Enfin, un ordinateur et un logiciel, le « Génie 2000 », permettent de recueillir le spectre en temps réel.

Le rôle essentiel de l'électronique est d'assurer l'amplification, la mise en forme et l'acquisition du signal délivré par le spectromètre gamma.

- ▶ **Le préamplificateur**

Pour diminuer le bruit électronique, le préamplificateur doit être placé le plus près possible du détecteur et il est solidaire du cryostat. Le préamplificateur est isolé de la haute tension par une capacité (Courtine, 2007).

Son rôle est d'assurer le transfert du signal vers l'amplificateur. Le préamplificateur assure les fonctionnalités suivantes :

- Conversion de charge en impulsion de tension.
- Réaliser une première amplification générée par l'interaction du gamma avec le Cristal.
- Réduire le bruit électronique.
- Récupérer le maximum de signal.

► l'amplificateur

L'amplificateur réalise deux tâches essentielles : la mise en forme du signal et son amplification. Il s'agit de filtrer le signal de manière à avoir le meilleur rapport signal sur bruit. Ensuite, le signal est intégré pour réduire le bruit et on obtient un signal quasiment gaussien (Courtine, 2007).

► Le convertisseur analogique-numérique

À la sortie de l'amplificateur on a un signal continu, le convertisseur transforme l'amplitude du signal en un nombre qui est proportionnelle à l'énergie déposée dans le cristal. La sortie de l'ADC est enregistrée dans une mémoire qui possède autant d'adresses que le maximum de numéro de canaux servant à découper le spectre final (Courtine, 2007).

► L'analyseur multicanaux

L'analyseur multicanaux sert à collecter et enregistrer les événements issus de l'ADC en les classant dans différents canaux : chaque canal correspond à une énergie. Dès qu'un signal a été analysé par l'ADC, l'adresse mémoire dans laquelle il a été enregistré est bloquée et son contenu est incrémenté d'un coup. Cela permet d'obtenir un histogramme en temps réel dans lequel l'énergie déposée dans le cristal est reliée au numéro de canal (plus l'énergie est élevée, plus le numéro de canal est grand) et le nombre de coups dans un canal donné est proportionnel au nombre de photons ayant déposé la même énergie dans le cristalecteur gamma (Courtine, 2007).

Les enregistrements obtenus sont des histogrammes qu'on appelle « spectre différentiels de hauteur d'impulsion ».

3.4 Logiciel de Spectrométrie -Génie 2000

Une fois transmis à la mémoire centrale de l'ordinateur, les signaux sont traités par un logiciel spécialisé « Génie 2000 ». L'ordinateur est donc conçu dans le but de visualiser la distribution des impulsions, en fonction de leurs énergies ou du numéro de canal correspondant sous forme d'un histogramme : c'est le spectre (ensembles des pics) qui doit être étalonné en énergie pour pouvoir identifier les désintégrations radioactives mises en jeu (Bakhti et Bakir, 2013).

Ce système assure les fonctions suivantes :

- La gestion des acquisitions.
- La mesure des paramètres de la chaîne de spectrométrie (résolution, énergie, rendement).
- La localisation des pics d'absorption totale.
- Le calcul des énergies et de la surface de chaque pic.

Le logiciel de spectrométrie Génie 2000 propose, dans un environnement convivial, l'acquisition, la visualisation et l'analyse de données spectrométriques sur l'ordinateur. Il permet de contrôler plusieurs détecteurs de façon indépendante et se connecte en réseau aisément (Nasri, 2010).

3.5 Conditions expérimentales

Pour qu'une chaîne de mesure soit apte à identifier et quantifier les radionucléides émetteurs gamma d'un échantillon, il faut l'étalonner en énergie et en efficacité.

➤ Étalonnage en énergie

L'étalonnage en énergie de la chaîne est une étape primordiale pour identifier tous les éléments radioactifs présents dans un échantillon à étudier, il consiste à faire correspondre à chaque canal de l'analyseur multicanaux une énergie correspondante afin d'avoir une fonction entre l'énergie et le numéro du canal (Ben Tekaya, 2010).

L'étalonnage en énergie est réalisé en utilisant des sources de références ponctuelles connues. Ces sources délivrées par les laboratoires de métrologie des rayonnements ionisants qui

fournissent des certificats donnant l'ensemble des caractéristiques de la source : nature, impuretés possibles, activité et date d'étalonnage. Le choix des sources d'étalonnage est dicté par l'étendue spectrale des échantillons à mesurer (Nasri, 2010).

La calibration s'effectue par l'utilisation des sources ponctuelles (^{241}Am , ^{137}Cs , ^{60}Co) qui ont des différentes énergies (59.5keV, 661.6keV, 1173.2keV et 1333.3keV) pour recouvert presque tous le spectre ou par un élément multiénergétique (^{152}Eu) qui dispose des raies gammas allant de 122 keV à 1408 keV.

Dans le présent travail l'étalonnage en énergie de détecteur est effectué à l'aide des sources radioactives suivantes ;

Tableau II.4 : Résultat d'étalonnage en énergie

Radionucléide	Energie (keV)	Numéro de Canal
	59,54	97,62
^{137}Cs	611,65	1064,74
^{60}Co	1173,22	1886,19
	1332,49	2140,26

En utilisant les données des sources étalons, la droite de calibration obtenue l'équation linéaire se forme

$$\mathbf{E = a + bC} \quad \mathbf{(2.1)}$$

E : Energie du radionucléide, en **keV** ;

C : Numéro du canal ;

a : Pente de la droite qui s'exprime en **keV/canal** ;

b : Valeur de l'énergie à l'origine qui s'exprime en **keV**.

La droite de calibration en énergie de la chaîne de mesure est donnée par la figure III.3.

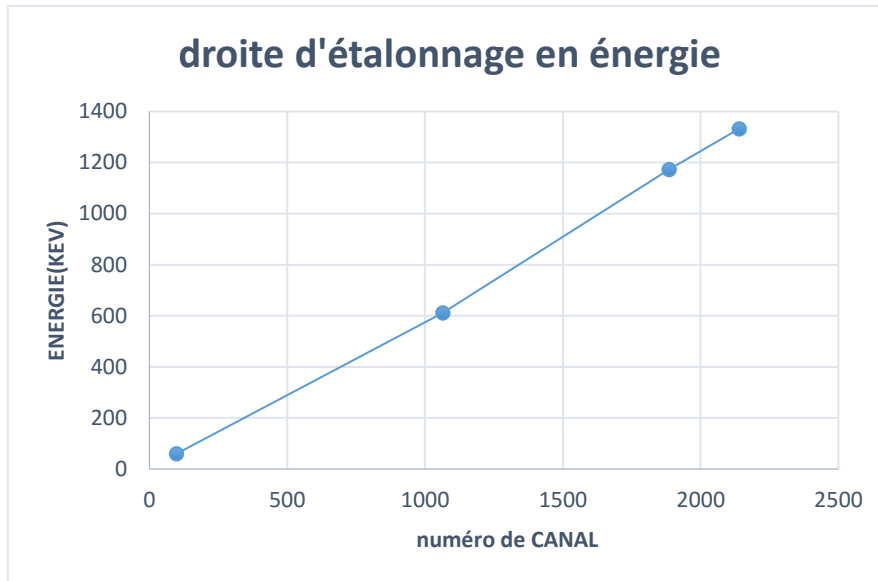


Figure II.3 : Droite d'étalonnage en énergie d'un détecteur.

➤ **Bruit de fond**

Le bruit de fond est le comptage ou l'enregistrement d'un spectre dans des conditions normales d'utilisations de la chaîne de mesure en l'absence de la source dont on veut compter le rayonnement.

Toute chaîne de comptage présente un bruit de fond provenant de différentes sources, à savoir :

- Les radionucléides naturels présents dans les matériaux auxiliaires du détecteur.
- Les radionucléides naturels présents dans les matériaux de construction du laboratoire (murs, parterre du local, etc.).
- Les rayons cosmiques.
- Les signaux de l'électronique associée.

La connaissance de ce bruit de fond est utile pour améliorer la justesse des résultats de mesure de l'activité, notamment dans le cas de présence de radioactivité à l'état des traces (Le petit et Granier, 2002).

L'analyse des spectres de bruit de fond a été faite par le logiciel génie 2000 et les résultats sont présentés dans le tableau (Annexe).

Donc après l'opération de la calibration en énergie et avant de passer au comptage de nos échantillons, on fait un comptage pour chaque marinelli, flacon ou/et filtre qui seront utilisés pour les échantillons.

➤ **Étalonnage en efficacité**

L'efficacité de détection (ϵ) d'un détecteur ou la sensibilité, est la mesure de sa capacité à détecter les radiations.

C'est un facteur qui permet de passer des valeurs mesurées du comptage aux activités des échantillons.

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

D'une façon générale, l'efficacité est le nombre de photons détectés sur le nombre de photons émis par la source.

L'efficacité de détection est donnée par relation suivante (AIEA, 1989) :

$$\epsilon = \frac{N}{A \cdot t \cdot I} \quad (2.2)$$

Avec :

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

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

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

t : Temps de comptage en seconde.

La grande diversité des échantillons de l'environnement, pose un certain problème, du fait qu'il faut disposer de plusieurs standards de différentes composition et géométrie, ce qui nécessite plus de moyens.

Dans cette étude, la calibration en efficacité a été faite en utilisant des standards qui ont été déjà préparé auparavant par l'équipe du laboratoire de l'environnement selon les protocoles suivants ;

● **Standard de l'eau**

En raison de la gamme d'énergie des radioéléments d'intérêt émetteurs gamma allant de 30 à 2000 KeV, deux standards ont été préparé un pour les faibles énergies contaminées par le ^{133}Ba et l'autre par l' ^{152}Eu pour les hautes énergies pour éviter la coïncidence selon le protocole suivant :

- Mettre 90 ml d'eau dans le même flacon de comptage.

- Ajuster le pH entre 1 et 2 en ajoutant quelques gouttes de HCl concentré à 37%, toute en agitant la solution.
- Injecter 5 ml de l' ^{152}Eu (activité 207,14Bq a été corrigé à la date 28/04/2014) ou Injecter 5 ml de ^{133}Ba .
- Laisser en agitation pour 5 min.
- Ajouter 15g d'AMP.
- Continue l'agitation pendant 10 min.
- Compter le précipité par la spectrométrie gamma.

● **Standard Filtre**

Deux échantillons standards ont été préparés en utilisant un filtre rectangulaire propre et deux sources radioactives liquides (^{152}Eu et ^{133}Ba).

L'échantillon standard a été contaminé par 5ml de l' ^{152}Eu et de ^{133}Ba avec une activité connue, et séché à l'étuve.

● **Standard des particules**

Plusieurs standards de volume 20 centimètres cube ont été préparés de différentes masses 3g, 6g, 9g, 12g afin d'améliorer la précision.

Et pour chaque masse, deux échantillons ont été préparés et chaque un de ces derniers a été injecté par une source radioactive liquide (^{133}Ba et ^{152}Eu) afin d'évité le problème de coïncidence entre les pics.

Après le comptage de standard pendant 24 heures par le spectrométrie gamma, nous effectuons les étapes suivantes :

- Analyse des spectres des sources étalons, dont les pics correspondent à des radionucléides d'activités connues et détermination de la surface nette de chaque pic aussi que l'activité de chaque radionucléide ;
- Calcule de l'efficacité de détection par l'équation (2.2);
- Traçage de la courbe représentative de l'efficacité en fonction de l'énergie.

3.6 Analyse des spectres

Les spectres sont formés d'une succession de pics. L'analyse de spectre a été effectuée à l'aide de logiciel Génie 2000 qui permet de donner le comptage net pour chaque radio élément présent dans l'échantillon.

Le spectre a été dépouillé manuellement afin d'identifier l'élément par la recherche de pic d'intérêt. Une fois ceci fait, nous obtenons les informations suivantes : l'énergie, le radionucléide émetteur gamma cette même énergie, et la surface nette.

Les valeurs de surfaces nettes et le temps de comptage sont ensuite utilisés afin de calculer l'activité des radioéléments d'intérêt par l'équation (2.3).

3.7 Expression des résultats

3.7.1 Calcul de l'activité spécifique

Pour le calcul d'activité, nous considérons toujours le radioélément ayant la probabilité d'émission la plus importante, dans le but d'avoir la meilleure statistique de comptage et par conséquent un résultat fiable.

Les radionucléides d'intérêts mesuré dans les différents échantillons de l'environnement dans ce travail sont au tableau ci-dessous ;

Tableau II.5 : Données relatives aux radionucléides d'intérêts (LHNHB, 2016).

Origine des radionucléides	Radionucléides	Energie (keV)	Intensité (%)	Période	Type de désintégration
Radionucléides Naturels	²¹⁰ Pb	46,539	4,252	22,23 a	β ⁻
	²³⁴ Th	63,30	3,75	24,10 j	β ⁻
	²¹² Pb	238,632	43,6	10,64 h	β ⁻
	²¹⁴ Pb	351,932	35,6	26,916 min	β ⁻
	⁷ Be	477,621	10,44	53,22 j	Γ
	²⁰⁸ Tl	583,187	85	3,058 min	β ⁻
	²¹⁴ Bi	609,312	45,49	19,8 min	β ⁻ , α
	²²⁸ Ac	911,196	26,2	6,15 h	β ⁻
radionucléides artificiels	⁴⁰ K	1460,822	10,55	1,2504*10 ⁹ a	β ⁻ , β ⁺
	¹³¹ I	364,489	81,2	8,0233 j	β ⁻
	¹³⁷ Cs	661,657	84,99	30,05 a	β ⁻
	¹³⁴ Cs	604,72 795	97,93 97,63	2,0644 a	β ⁻

L'activité spécifique est en Bq/m³ pour les échantillons liquides ou en Bq/Kg pour les échantillons Solides, elle est liée directement à la surface du pic selon l'expression suivante (AIEA, 1989) :

$$A = \frac{N_{net}}{\varepsilon \cdot t \cdot I \cdot G \cdot F} \quad (2.3)$$

Où :

$N_{net} = N_R - N_{bf}$: Surface d'un pic de l'élément considéré (N_{bf} : Surface de bruit de fond au pic du radioélément considéré).

ε : Efficacité ou rendement de détection.

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

t : Temps de comptage en second.

G : Facteur de géométrie (masse ou volume).

F : Facteur correctifs.

Et pour corriger les activités du ⁷Be et les radionucléides artificiels dans le compartiment atmosphérique, deux facteurs ont été prises en compte ;

- ✓ Le facteur correctif pour la décroissance du radionucléide durant la période d'attente allant du fin d'échantillonnage au début d'analyse, noté K_w , est donné par la formule (Kiesewetter et al, 2000) :

$$K_w = e^{\left[\frac{-\ln(2) \cdot t_w}{T_{1/2}} \right]} \quad (2.4)$$

- ✓ Le facteur correctif pour la décroissance du radionucléide durant la période d'échantillonnage appliqué aux échantillons d'aérosols et dépôts secs et /ou humides, noté K_s , est donné par la formule (Kiesewetter et al, 2000):

$$K_s = \frac{T_{1/2}}{\ln(2) \cdot t_s} \cdot \left[1 - e^{\left(\frac{-\ln(2) \cdot t_s}{T_{1/2}} \right)} \right] \quad (2.5)$$

3.7.2 L'incertitude absolue sur l'activité

Elle est donnée par la loi de propagation de l'erreur qui est donnée par la relation suivante (AIEA, 1989) :

$$\frac{\delta A}{A} = \sqrt{\left(\frac{\delta N_{\text{net}}}{N_{\text{net}}}\right)^2 + \left(\frac{\delta \varepsilon}{\varepsilon}\right)^2 + \left(\frac{\delta I}{I}\right)^2 + \left(\frac{\delta G}{G}\right)^2 + \left(\frac{\delta t}{t}\right)^2} \quad (2.6)$$

3.7.3 Activité minimale détectable

L'activité au dissous de laquelle un radionucléide n'est pas détecté elle peut être calculé pour les radionucléides présente dans le spectre enregistré mais aussi pour les autres isotopes non détecté mais faisant partie de la bibliothèque utilisée (Taieb errahmani, 2013).

Dans ce travail, nous avons calculé l'activité minimale détectable par la formule suivante ; (currie,1968)

$$AMD = \frac{K^2 + 2K\sqrt{2B}}{I \cdot \xi \cdot t} \quad (2.7)$$

Tel que ;

K : niveau de confiance qui égale à 1,645;

B : Bruit de fond

ξ : efficacité de détection ;

t : temps de comptage de standards ;

I : intensité de mesure.

4. Techniques complémentaires

L'aérosol atmosphérique est composé d'une multitude de familles chimiques organiques et inorganiques. Sa composition chimique varie selon la nature de l'aérosol et selon les différents processus physico-chimiques se déroulant dans l'atmosphère pendant son transport. L'étude de la composition chimique de l'aérosol permet de renseigner les sources ainsi que les processus d'évolution des concentrations en particules observées sur un site d'analyse.

4.1 Composition chimique

4.1.1 Spectrométrie de la fluorescence X

La spectrométrie de fluorescence est une technique non destructive d'analyse élémentaire globale permettant d'identifier et de déterminer la plupart des éléments chimiques qui composent un échantillon cette technique s'applique à des échantillons de différentes natures

(minéraux, céramique, huiles...) sous forme liquide ou solide. Elle permet de doser les éléments, allant du phosphore à l'uranium.

L'identification des éléments présents dans une matrice est donnée par l'analyse qualitative, par contre la teneur des éléments est donnée par l'analyse quantitative (Valérie, 2014).

4.1.1.1 Principe de la technique XRF

La spectrométrie de fluorescence X est une méthode d'analyse chimique utilisant une propriété physique de la matière, la fluorescence de rayons X. Le principe de l'analyse consiste au bombardement d'un échantillon par un rayonnement γ ou X issu d'une source radioactive ou d'un générateur de rayons X, conduisant à l'émission de rayons X qui lui sont propres. Les spectres des raies X observés sont caractéristiques des éléments présents dans l'échantillon, et les aires de ces raies X permettent de déterminer leur teneur (Bertin, 1972).

4.1.1.2 Principe de l'analyse par XRF

Le principe de l'analyse repose sur la comparaison de l'aire d'une raie X d'un élément d'un échantillon standard de concentration connue avec celle de la même raie X de l'élément de l'échantillon (Isidore Adler, 1966). Le spectre des rayons X accumulé pendant ce processus révèle un certain nombre de pics caractéristiques. Les énergies des pics nous permettent d'identifier les éléments présents dans l'échantillon (analyse qualitative), tandis que les intensités des pics fournissent la concentration relative ou absolue (analyse semi-quantitative ou quantitative).

Pour l'analyse du rayonnement de fluorescence X émis par l'échantillon, il existe deux grands types d'appareillage : les spectromètres à dispersion en longueur d'onde (WD-XRF, Wavelength Dispersive X-ray Fluorescence Spectrometry) et les spectromètres à dispersion en énergie (ED-XRF, Energy Dispersive X-ray Fluorescence Spectrometry) (Valérie, 2014).

4.1.1.3 Fluorescence X à énergie dispersive

Dans ce travail nous avons déterminé la composition chimique des particules par un spectromètre à dispersive en énergie (ED-XRF), c'est une technique qui permet d'analyser le faisceau des rayons en entier et simultanément (Knudsen et al., 1981).

Ce spectromètre utilise la sensibilité de détecteur à l'énergie des photons X émis par les atomes qui constituent l'échantillon à analyser (Valérie, 2014).

Il s'agit de détecteur au silicium à diffusion (Silicon Drift Detector, SDD) connecté à un amplificateur.

Le détecteur convertit chaque photon incident en charge électrique proportionnelle au niveau d'énergie du photon, il permet de classer les photons par ordre de niveau d'énergie (Valérie, 2014).

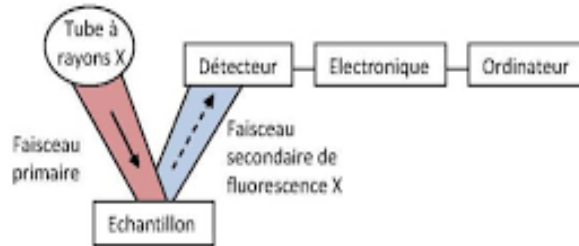


Figure II.4 : Schéma de principe d'un spectromètre à dispersion en énergie (Valérie, 2014).

Leur concept de base de tous les spectromètres est constitué des éléments suivants : une source de rayonnement, un échantillon et un système de détection. Dans le spectromètre EDXRF, le tube à rayons X, qui agit en tant que source, irradie directement un échantillon et la fluorescence provenant de l'échantillon est mesurée avec un détecteur à dispersion d'énergie. Ce détecteur est capable de mesurer les différentes énergies du rayonnement caractéristique provenant directement de l'échantillon. Le détecteur peut distinguer le rayonnement de l'échantillon des rayonnements des différents éléments présents dans l'échantillon. Cette séparation est appelée dispersion (Belarbi, 2019).

4.1.1.4 Application sur les échantillons de particules

Dans cette étude trois échantillons de particules ont été pesés à l'aide d'une balance électrique dans des capsules dont le fond est un film polymère (Mylar) et ont été analysés par l'EDXRF pendant quelques minutes.

Le principe de la méthode d'analyse utilisée est basé sur la comparaison de l'intensité du pic dans le standard pour un élément donné avec l'intensité du pic de l'élément recherché dans l'échantillon, tout en faisant soustraire l'air du pic du blanc (Belarbi, 2019).

Le logiciel de mesure nous permet d'obtenir des spectres exprimant l'intensité de l'émission fluorescente en coups par seconde en fonction de l'énergie des transitions correspondantes.

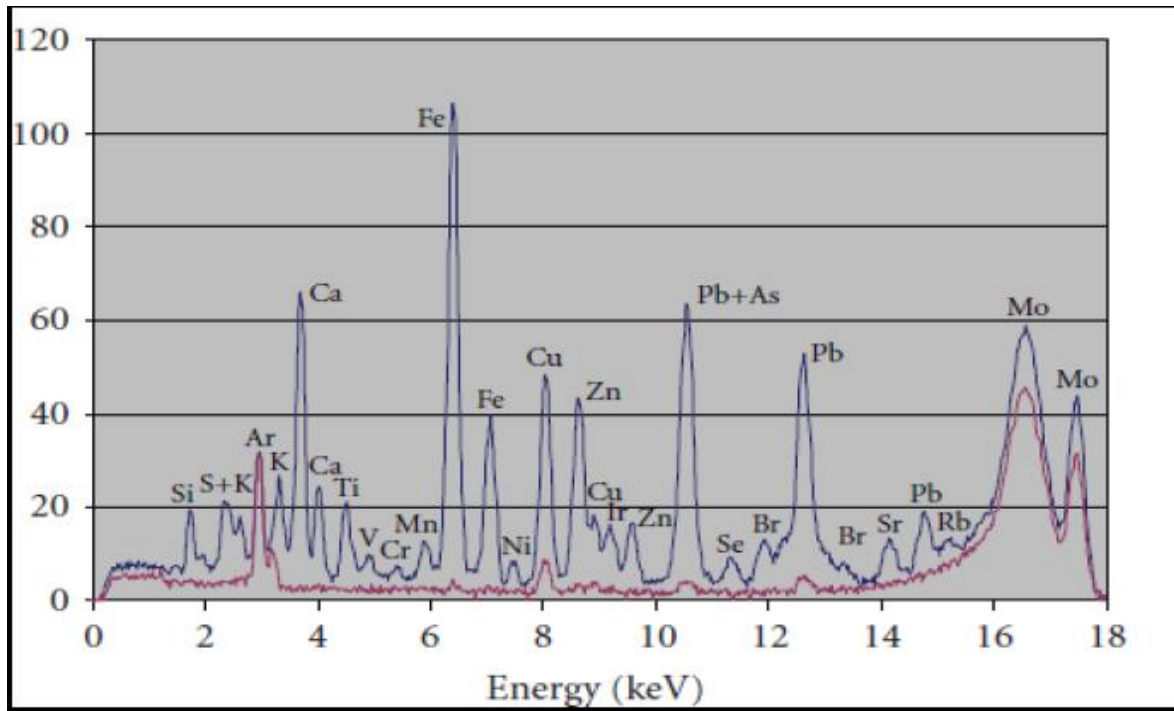


Figure II.5 : Spectre d'énergie typique en fluorescence X (Mounia, 2011).

- Calcul de résultat

Après avoir passé l'échantillon dans l'analyseur de fluorescence X, les résultats obtenus par le logiciel représentent des analyses qualitatives décrivent le positionnement des raies, et des analyses quantitatives montrent l'aire des raies ou l'intensité, cette dernière est transformée en concentration par un facteur de correction en utilisant la concentration d'échantillon de référence certifié par l'AIEA, codé : RF-MUSSEL.AIEA-461, ainsi que son intensité détectée. Le facteur de correction exprimé par l'équation suivante :

$$Cx = Cst \times \frac{Ix}{Istd} \quad (2.8)$$

Tel que :

Cx : la concentration de l'élément dans l'échantillon en $\mu\text{g/g}$.

Cst : la concentration de l'élément dans le standard en $\mu\text{g/g}$.

Ix, Istd : sont les intensités de l'élément respectivement dans l'échantillon et dans le standard en coups.

4.1.2 Analyse de la matière organique dans les particules atmosphériques

Pour la détermination de la teneur en matière organique dans nos échantillons de particules (trois échantillons), nous avons utilisé la méthode de la différence d'allumage qui est une estimation approximative obtenue en mesurant la perte de poids à l'allumage (combustion) (Difference-On-Ignition method : D.O.I.) avec des conditions (poids d'échantillon, la température de combustion et le temps de combustion) proposées par Luczak et al en 1997, cette méthode consiste à ;

- Peser avec une balance électrique 2g d'échantillon dans un creuset en porcelaine.
- Mettre les échantillons dans un four à moufle à 480°C pendant 4h où va dégrader toute la matière organique ensuite nous les pesons une autre fois après la calcination pour déterminer la teneur en matière organique par la formule suivante :

$$\text{MO} = (\text{P1}-\text{P2}) / \text{Masse d'échantillon} * 100 \quad (2.9)$$

Avec ;

P1 : le poids d'échantillon + creuset avant calcination

P2: le poids d'échantillon + creuset après calcination

MO : matière organique.

5. Modélisation des rétrotrajectoires des masses d'air en utilisant le code HYSPLIT

Dans ce chapitre, uniquement la méthodologie utilisée pour la détermination des rétrotrajectoires est abordé dans ce qui suit ;

Dans la présente étude, nous avons utilisé le model HYSPLIT-4 pour identifier l'origine des masses d'air arrivant sur notre site Alger sur une période de deux mois, entre le 01 mars 2011 et le 30 avril 2011, c'est-à-dire essayer de poursuivre les particules polluantes à travers un temps déterminé dans l'espace. Les rétrotrajectoires (backward) ont été calculées chaque les six heures pour une altitude de 162 m au-dessus du niveau du sol, avec un temps de 96 h avant et après la date de prélèvement de chaque filtre.

5.1 Configuration de la rétrotrajectoire

- Crée un fichier CONTROL dans le répertoire de travail.

Ouvrir le sous l'onglet "Trajectoire" puis sélectionner « setup run » (mettre en place et gérer). Un tableau s'affiche dont plusieurs options doivent être saisies.

Etape 01 : En premier lieu, entrer l'année, le mois, le jour et l'heure de départ de la trajectoire. C'est donc à ce moment-là que le calcul de la trajectoire est commencé.

Etape 02 : Sélectionner le nombre de lieux de départ. Dans ce cas, un seul lieu est sélectionné.

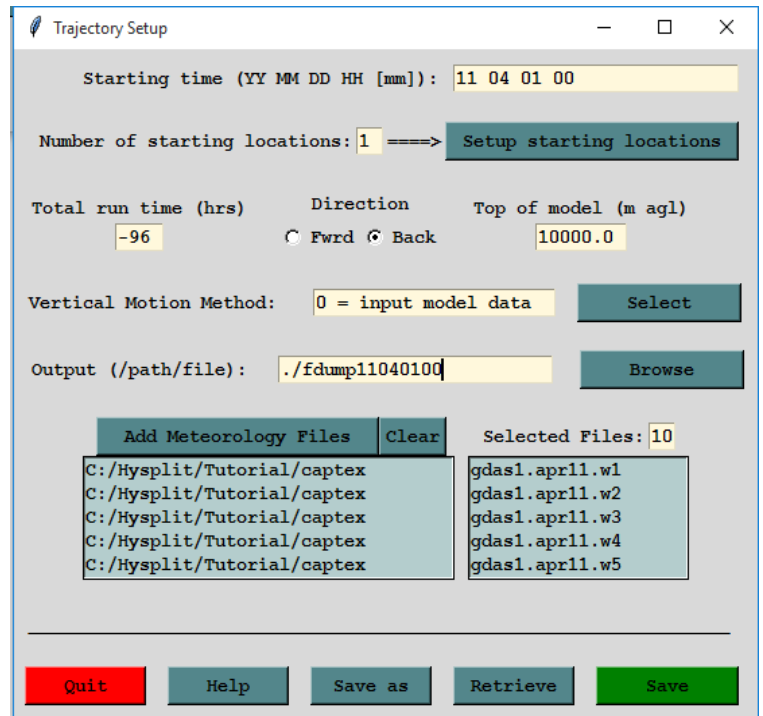


Figure II.6 : Interface de la mise en place et la gestion de la trajectoire.

Etape 03 : Sur la barre « setup starting locations », faire entrer la localisation du lieu de départ qui est la station de CRNA qui se trouve au 7ème étage (latitude :36.7799 N / longitude : 3.0524 E / hauteur : 162m ; la hauteur de l'échantillonneur).

Etape 04 : Choisir le temps de fonctionnement, la direction ainsi que le haut du modèle.

- Une période de 4 jours est choisie pour suivre la trajectoire dans une direction arrière (back) et hauteur de 162m. Peut être exécuté en avant où en arrière ;
 - Les trajectoires avant vous disent où l'air va aller.
 - Les trajectoires en arrière vous indiquent d'où vient l'air.
- Le haut du modèle signifie juste, la hauteur à laquelle le traitement de l'entrée les données météorologiques doit être arrivé. Certains fichiers de données contiennent des données bien élevées dans la stratosphère.

Etape 05 : Choisir et ajouter la méthode du mouvement vertical

La sélection par défaut des "données" utilisera les champs de vitesse verticale du modèle météorologique.

Etape 06 : Choisir le fichier de sortie sur lequel les points d'extrémité des trajectoires seront écrits. Dans ce cas, Un fichier nommé « fdump » est utilisé, qui représente l'abréviation de Fukushima. Ensuite suivi par la date de trajectoire qu'on veut calculer.

Etape 07 : Dans cette dernière étape, introduit en entrée le fichier de données météorologiques GDAS (Global Data Assimilation System) fournies par la NOAA/NCEP (National Oceanic and Atmospheric Administration/National Center for Environmental Prediction) et le NCAR (National Center for Atmospheric Research).téléchargé auparavant à partir du site de NOAA (<ftp://arlftp.arlhq.noaa.gov/pub/archives/gdas1>) et enregistré dans le tutoriel/captex et le nom du fichier suivi du répertoire de la sortie. Cliquer ensuite sur enregistrer.

- Plusieurs fichiers peuvent être ajoutés en cliquant sur « Add Meterology Files »

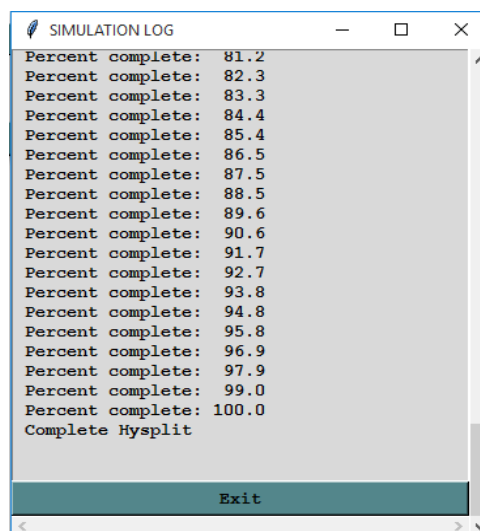
À ce stade, le HYSPLIT se trouve dans le répertoire de travail, lorsque nous cliquons sur sauvegarder, il crée un fichier appelé default_traj, qui possède les données obtenues.

5.2 Exécution du Modèle

- Exécute le modèle hyts_std.

Cliquer sur l'onglet « Run model » pour exécuter le modèle. HYSPLIT va ouvrir essentiellement le modèle de trajectoire exécutable qui se trouve dans le dossier de travail.

Lorsque l'exécution du modèle commence, les messages de sortie sont écrits dans une fenêtre spéciale, dont un exemple est présenté dans l'illustration ci-dessous :



```
SIMULATION LOG
Percent complete: 81.2
Percent complete: 82.3
Percent complete: 83.3
Percent complete: 84.4
Percent complete: 85.4
Percent complete: 86.5
Percent complete: 87.5
Percent complete: 88.5
Percent complete: 89.6
Percent complete: 90.6
Percent complete: 91.7
Percent complete: 92.7
Percent complete: 93.8
Percent complete: 94.8
Percent complete: 95.8
Percent complete: 96.9
Percent complete: 97.9
Percent complete: 99.0
Percent complete: 100.0
Complete Hysplit
Exit
```

Figure II.7 : Fenêtre de calcul de trajectoire.

5.2.1 Affichage de la trajectoire

- Exécute le programme trajplot.

Aller sur l'onglet « display », un tableau ainsi s'affiche dont les informations nécessaires sont pré-remplies dans le menu de configuration. Le fichier fdump des points terminaux est mis en évidence pour ensuite créer un fichier Postscript appelé trajplot.

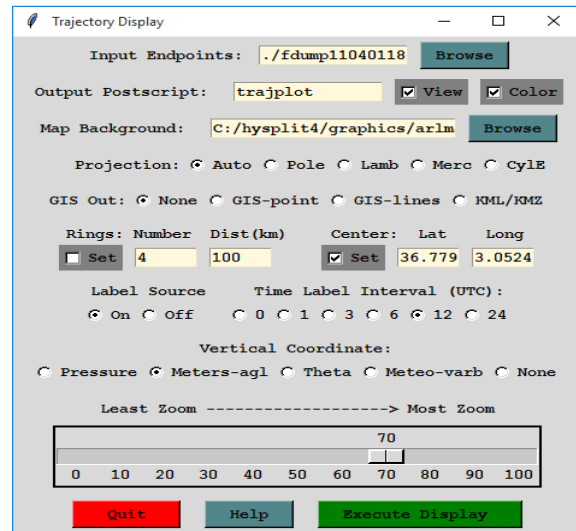


Figure II.8: Fenêtre d'affichage des trajectoires

Une projection, ensuite est appliquée automatiquement.

L'option zoom sert à contrôler la quantité d'espace blanc autour de la trajectoire.

À la fin la trajectoire est créée en forme d'interface graphique visualisée par logiciel GSviews 5.0

L'objectif de l'interface graphique est de configurer le fichier de contrôle d'entrée du modèle.

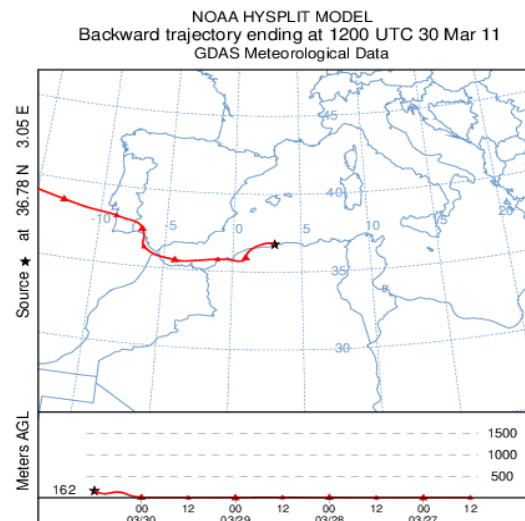


Figure II.9 : Exemple d'une rétrotrajectoire.

5.3 Classification statique non superposé (clustering)

C'est une autre façon d'analyser un grand nombre de trajectoires, cette approche consiste à fusionner les trajectoires qui sont proches les unes des autres et à représenter ces groupes, appelés clusters, par leur trajectoire moyenne. Les différences entre les trajectoires au sein d'un groupe sont minimisées tandis que les différences entre les groupes sont maximisées. Par calcul, les trajectoires sont combinées jusqu'à ce que la variance totale des trajectoires individuelles par rapport à la moyenne de leur groupe commence à augmenter. Cela se produit lorsque des grappes disparates sont combinées.

Étape 1 : Ouvrir l'interface utilisateur graphique.

Cliquer sur trajectoire, courses spéciales puis regroupement ensuite standard. Ce menu contient plusieurs options que nous devons modifier.

Nos trajectoires durent 96 heures, donc nous voulons visualiser la longueur entière de la trajectoire, lorsque nous comparons les trajectoires. Le regroupement s'intéresse à la différence entre deux trajectoires.

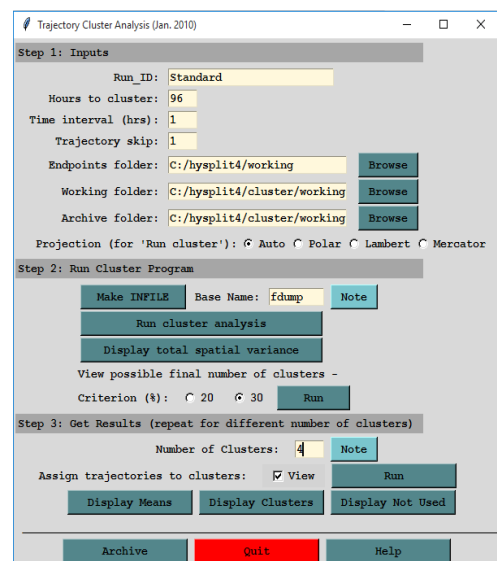


Figure II.10 : Interface d'analyse de grappes des trajectoires.

Étape 2 : Sélectionner les données d'entrée

- Définir l'heure ;
- Le fichier d'entrée (hysplit4/working) ;
- Le fichier de sortie (hysplit4/cluster/working).

Étape 3 : Analyse des grappes

- Définir le nom de base, le nom du joker pour visualiser ces fichiers (fdump);
- Lancer l'analyse des grappes ;
- Afficher la variance spatiale totale.

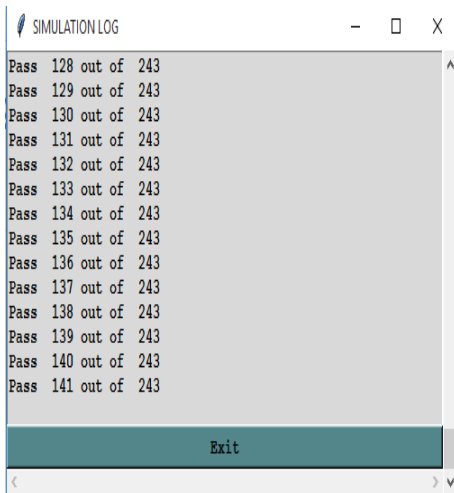


Figure II.11: Fenêtre de calcul des grappes.

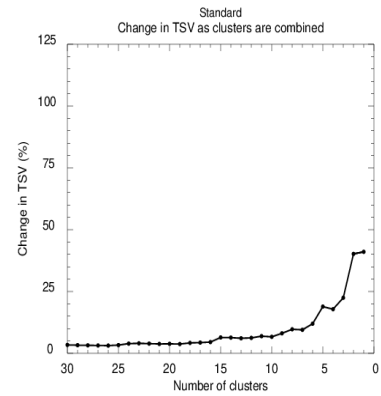


Figure II.12 : Variance spatiale totale.

Etape 4 : Obtenir les résultats

- Sélectionner le nombre de cluster (4).
- Afficher le résultat.

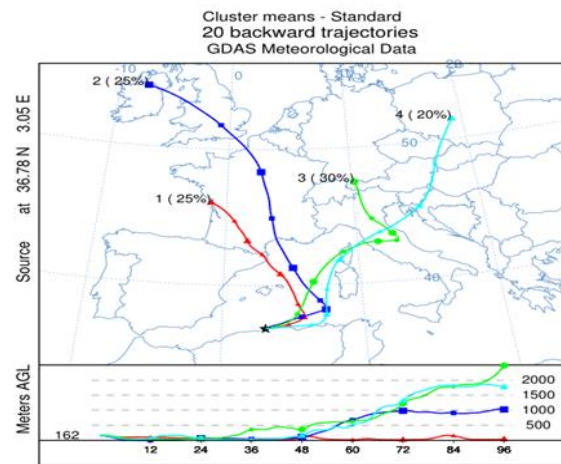
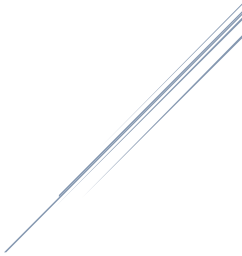


Figure II.13 : Exemple d'un centroïde des rétrotrajectoires.

Résultats et Discussions



Les résultats obtenus de l'analyse des échantillons de compartiment atmosphérique (aérosols, particules, eau de pluie) par l'utilisation de la spectrométrie gamma, ainsi que la détermination de la composition chimique des particules atmosphériques et les rétrotrajectoires des masses d'air sont présentés dans ce chapitre.

Les standards préparés de ces échantillons nous a permis de calculer les efficacités qui ont été utilisées pour le calcul des activités et leurs incertitudes des différents radionucléides d'intérêt.

1. Efficacités des différents radionucléides d'intérêt

Le rôle de l'efficacité est de déterminer les activités spécifiques des radionucléides d'intérêts émetteurs gamma par unité de masse (Bq/kg) pour les particules atmosphériques ou par unité de volume (Bq/m³ ou Bq/l) pour les aérosols et eaux de pluies.

Le logiciel de traitement du signal Génie 2000 a permis après l'exploitation des efficacités des différents standards et de tracer les courbes d'efficacité en fonction d'énergie.

1.1 Efficacité filtre

Les standards filtres ont été comptés par spectrométrie gamma pendant 48h. le logiciel Genie 2K a permis de tracer les efficacités combinées des deux radionucléides (¹⁵²Eu et ¹³³Ba) en fonction de l'énergie (Fig.III.1).

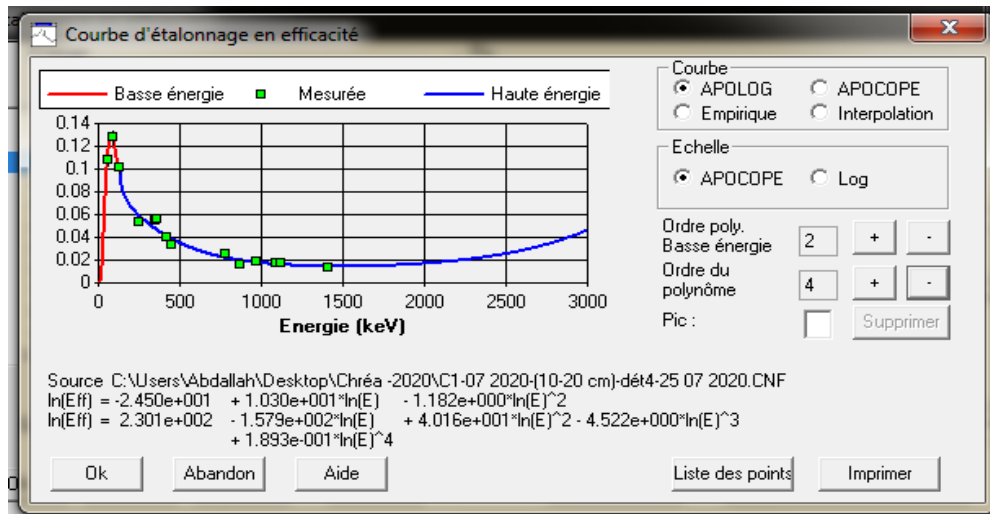


Figure III.1 : Courbe d'efficacité de deux standards filtres.

Les énergies des différents radionucléides d'intérêt ont été remplacées dans les deux équations obtenues après le traçage de courbe un pour les faibles énergies et l'autre pour les hautes énergies, ce qui nous a permis de calculer les efficacités de ces radionucléides et les résultats obtenus sont donnés dans le tableau III.1.

Tableau III.1 : Efficacités des radionucléides d'intérêt étudiés des standards filtres.

Radionucléide	Energie(keV)	LN ξ	$\xi \pm 6 \xi$ (%)
²¹⁰ Pb	46,5	-2,3770	0,09±4,96
²³⁴ Th	63,3	-2,1130	0,12±4,96
²¹² Pb	238,6	-2,6231	0,07±4,96
²¹⁴ Pb	351,9	-2,8563	0,06±5,04
¹³¹ I	364,5	-2,8815	0,06±5,00
⁷ Be	477,6	-3,1040	0,04±4,89
²⁰⁸ Tl	583,2	-3,2970	0,04±4,86
²¹⁴ Bi	609,3	-3,3415	0,04±4,52
¹³⁷ Cs	661,7	-3,4265	0,03±4,92
¹³⁴ Cs	604,72	-3,6155	0,03±4,81
	795		
²²⁸ Ac	911,2	-3,7472	0,02±5,08
⁴⁰ K	1460,8	-4,0004	0,02±4,92

Les filtres collectés en période de l'accident de Fukushima ont été comptés dans un autre détecteur, donc les efficacités des radionucléides seront changées, et les résultats obtenus sont illustrés dans le tableau III.2.

Tableau III.2 : Efficacités des radionucléides d'intérêt étudiés du détecteur 2.

Radionucléide	Energie (keV)	Intensité (%)	$\xi \pm 6 \xi$ (%)
¹³¹ I	364,5	81,2	0,02±5
¹³⁷ Cs	661,7	84,99	0,01±5
¹³⁴ Cs	604,72	97,93	0,01±5
	795	97,63	

Et en absence de l'efficacité de détecteur 3, des rapports entre les efficacités du détecteur 1 et détecteur 3 ont été établis et ces rapports ont été utilisés pour calculer de manière approchée les efficacités.

Tableau III.3 : Efficacités des radionucléides d'intérêt étudiés du détecteur 3.

Radionucléide	Energie (keV)	Intensité (%)	$\xi \pm 6\xi$ (%)
^{131}I	364,5	81,2	0,018 \pm 5
^{137}Cs	661,7	84,99	0,008 \pm 5
^{134}Cs	604,72	97,93	0,006 \pm 5
	795	97,63	

1.2 Efficacité eau

Les deux standards de l'eau ont été comptés par le détecteur n°4 pendant 48h. le logiciel Génie 2K a permis de tracer les efficacités combinées des deux radionucléides (^{152}Eu et ^{133}Ba) en fonction de l'énergie (Fig.III.2).

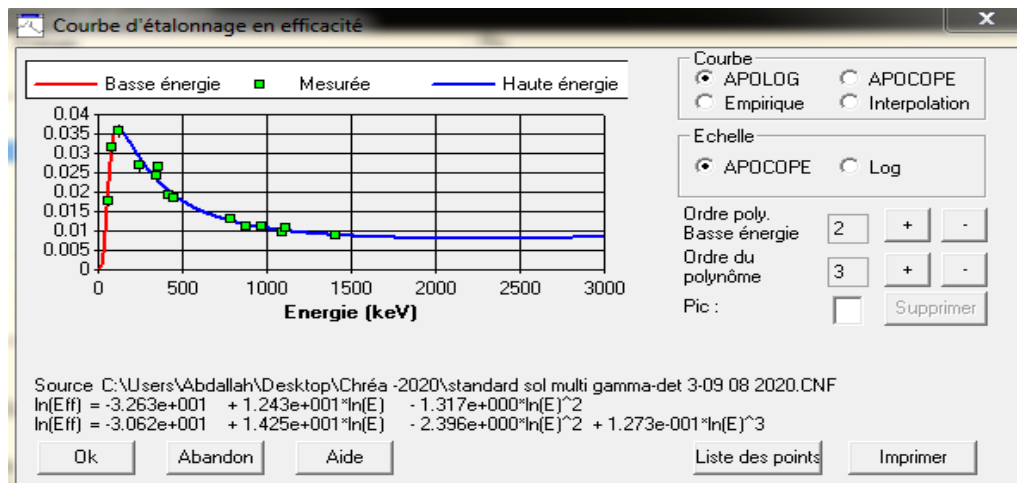


Figure III.2 : courbe d'efficacité de deux standards de marinelli.

En remplaçant les énergies des différents radionucléides d'intérêt dans les deux équations, nous pourrions calculer l'efficacité de ces radionucléides et les résultats obtenus sont représentés dans le tableau III.4.

Tableau III.4 : *Efficacités des radionucléides d'intérêt étudiés du standard eau.*

Radionucléide	Energie (keV)	LN ξ	$\xi \pm 6\xi(\%)$
²¹⁰ Pb	46,5	-4,3181	0,01±4,51
²³⁴ Th	63,3	-3,7307	0,02±5
²¹² Pb	238,6	-3,5308	0,03±5,12
²¹⁴ Pb	351,9	-3,7785	0,02±4,82
¹³¹ I	364,5	-3,8039	0,02±4,93
⁷ Be	477,6	-4,0087	0,02±4,97
²⁰⁸ Tl	583,2	-4,1647	0,02±5,16
²¹⁴ Bi	609,3	-4,1988	0,02±4,66
¹³⁷ Cs	661,7	-4,2622	0,01±5
¹³⁴ Cs	604,72 795	-4,3988	0,01±4,88
²²⁸ Ac	911,2	-4,4938	0,01±5,36
⁴⁰ K	1460,8	-4,7509	0,09±4,65

1.3 Efficacité des particules

Pour améliorer la précision, quatre courbes d'efficacité en fonction d'énergie ont été tracés à l'aide de logiciel génie 2000 à partir des données exploitées des 4 standards qui ont été préparés de différents poids (3g, 6g, 9g, 12g). Les courbes d'étalonnage en efficacité des standards de particule (6g, 9g et 12g) sont illustrées dans l'annexe.

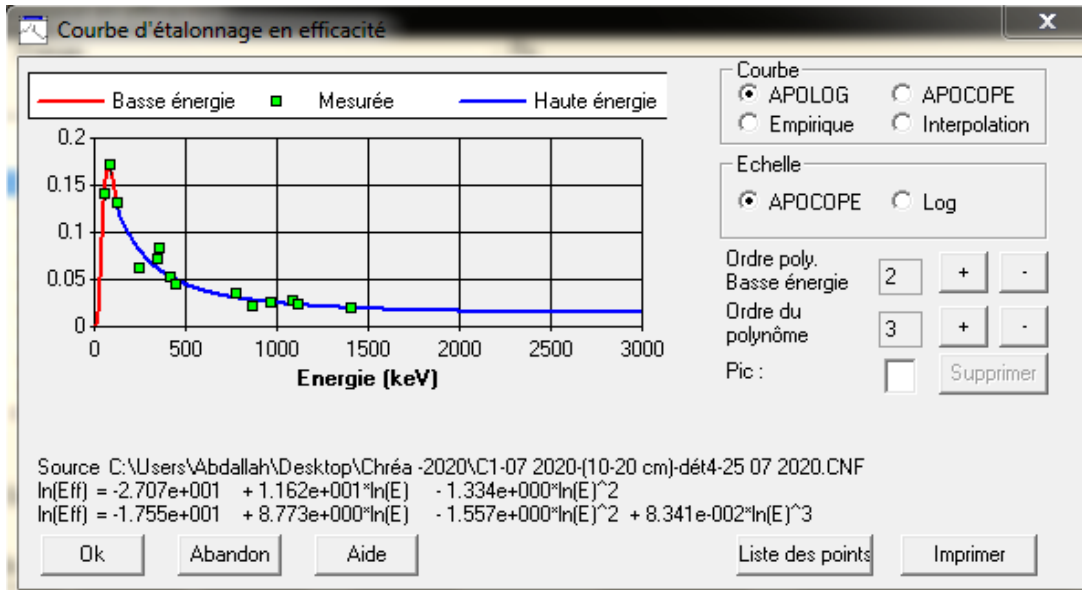


Figure III.3 : Courbe d'efficacit  de deux standards de particules d'une masse de 3g.

La substitution des  nergies des diff rents radionucl ides d'int r t dans les diff rentes  quations nous a permis de calculer l'efficacit  de ces radionucl ides et les r sultats obtenus sont projet s dans le tableau III.5.

Tableau III.5 : Efficacit s des radionucl ides d'int r t  tudi s dans diff rentes masses des particules.

Radionucl�ide	$\xi \pm 6 \xi$ (%)			
	3 g	6 g	9 g	12 g
²¹⁰ Pb	0,12±4,94	0,07±4,94	0,06±4,97	0,05±4,99
²³⁴ Th	0,16±5,01	0,12±5,03	0,10±4,97	0,08±4,95
²¹² Pb	0,08±5	0,07±4,96	0,06±4,94	0,05±5,05
²¹⁴ Pb	0,06±5,05	0,05±5,05	0,04±5,07	0,04±4,92
¹³¹ I	0,06±5,04	0,05±5	0,04±4,97	0,03±5,07
⁷ Be	0,05±5,12	0,04±5,05	0,03±5,03	0,03±4,95
²⁰⁸ Tl	0,04±5,06	0,03±5,12	0,03±4,85	0,02±5,02
²¹⁴ Bi	0,04±5	0,03±5,16	0,02±5,04	0,02±4,78
¹³⁷ Cs	0,03±5,08	0,03±5,03	0,02±5	0,02±5,12
¹³⁴ Cs	0,03±4,90	0,02±5,10	0,02±4,83	0,02±4,86
²²⁸ Ac	0,02±5,13	0,02±4,82	0,02±4,86	0,02±4,82
⁴⁰ K	0,02±5,02	0,02±4,91	0,01±4,91	0,01±4,24

Après nous avons tracé les courbes d'efficacité en fonction de masse pour chaque radionucléide d'intérêt et calculer les efficacités en remplaçant les masses de nos échantillons dans les équations obtenues (Tableau III.5) les résultats présentés dans le Tableau III.6.

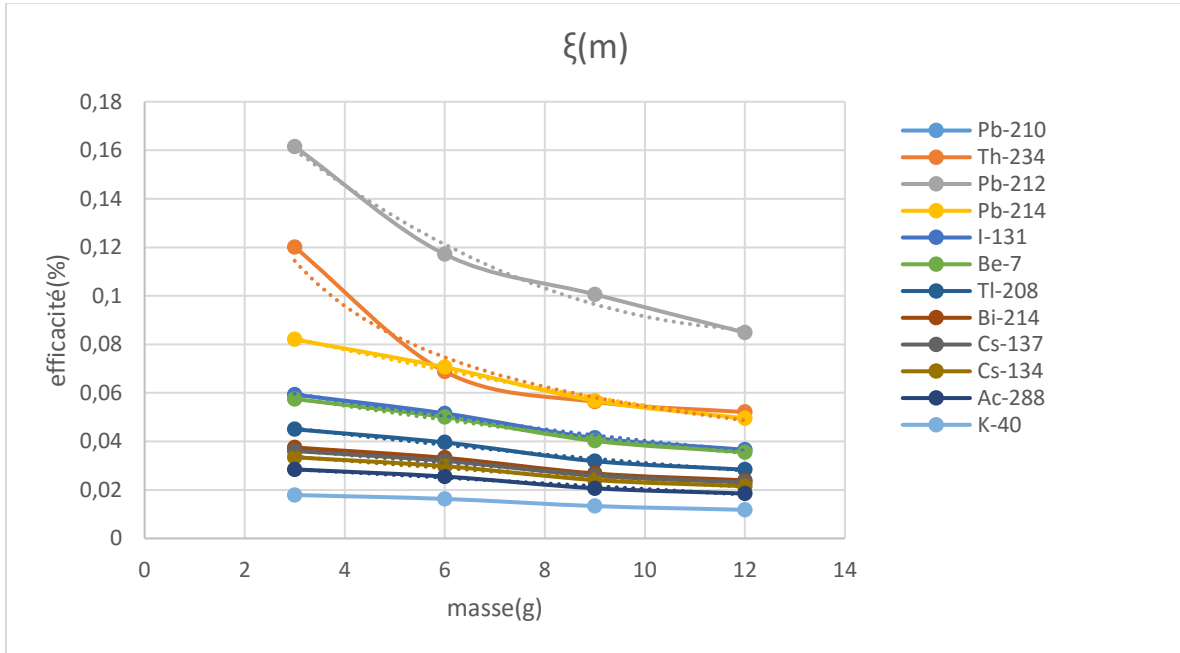


Figure III.4 : Courbes d'efficacité en fonction de masse.

Tableau III.6 : Les équations utilisées pour le calcul d'efficacité des radionucléides.

Radionucléide	Equation	R ²
²¹⁰ Pb	$y = 0,0013x^2 - 0,0268x + 0,1873$	0,9841
²³⁴ Th	$y = 0,2663x^{-0,454}$	0,9961
²¹² Pb	$y = 0,0001x^2 - 0,0055x + 0,0978$	0,9936
²¹⁴ Pb	$y = 8E-05x^2 - 0,0038x + 0,0704$	0,9906
¹³¹ I	$y = 8E-05x^2 - 0,0037x + 0,0682$	0,9903
⁷ Be	$y = 5E-05x^2 - 0,0027x + 0,053$	0,9875
²⁰⁸ Tl	$y = 4E-05x^2 - 0,0022x + 0,0439$	0,9854
²¹⁴ Bi	$y = 4E-05x^2 - 0,0021x + 0,0421$	0,9849
¹³⁷ Cs	$y = 3E-05x^2 - 0,0019x + 0,039$	0,9841
¹³⁴ Cs	$y = 2E-05x^2 - 0,0015x + 0,033$	0,9826
²²⁸ Ac	$y = -0,001x + 0,0285$	0,9802
⁴⁰ K	$y = -0,0007x + 0,0201$	0,984

Tableau III.7 : Efficacités des radionucléides d'intérêts étudiés dans les différentes masses des échantillons des particules.

Radionucléide	$\xi \pm 6\xi$ (%)		
	4,76 g	12,39 g	14,45 g
²¹⁰ Pb	0,09±5,04	0,05±4,93	0,07±5,03
²³⁴ Th	0,13±5,03	0,08±4,95	0,08±5,05
²¹² Pb	0,07±5,01	0,04±4,89	0,04±5,10
²¹⁴ Pb	0,05±4,99	0,03±5,06	0,03±4,97
¹³¹ I	0,05±4,96	0,03±4,91	0,03±5,09
⁷ Be	0,04±5,08	0,03±5,15	0,02±4,92
²⁰⁸ Tl	0,03±4,96	0,02±4,82	0,02±4,88
²¹⁴ Bi	0,03±4,85	0,02±4,95	0,02±4,97
¹³⁷ Cs	0,03±4,90	0,02±5	0,02±5,06
¹³⁴ Cs	0,03±4,94	0,02±4,57	0,01±5,16
²²⁸ Ac	0,02±5,06	0,02±4,97	0,01±5
⁴⁰ K	0,02±4,76	0,01±4,38	0,01±5,55

2. Passage du nuage radioactif de l'accident de Fukushima à la bande Nord Centre du pays

2.1 Activités spécifiques des radionucléides d'intérêt

Les activités spécifiques ainsi que leurs incertitudes ont été calculées à l'aide des équations (2.3) et (2.6), respectivement.

L'exploitation des données d'analyses des spectres d'acquisitions des radionucléides présents dans les filtres prélevés durant la période de l'accident a permis de calculer les activités et leurs incertitudes, dont les résultats sont mentionnés dans le Tableau III.8.

Tableau III.8 : Activités spécifiques des radionucléides dans les aérosols de la période 2011.

Code Ech	Date de prélèvement	Date de collecte	Activité spécifique (mBq / m ³)		
			¹³¹ I	¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs
FK 1	30/3/2011 à 14h30	4/4/2011 à 11h00	0,507±0,027	0,043±0,004	0,033±0,003
FK 2	5/4/2011 à 11h30	14/4/2011 à 10h30	0,056±0,004	0,016±0,002	0,011±0,002
FK 3	14/4/2011 à 10h30	18/4/2011 à 15h30	0,032±0,004	0,015±0,003	0,017±0,003
FK 4	18/4/2011 à 15h30	26/4/2011 à 15h	0,010±0,003	0,005±0,002	0,004±0,002
FK 5	26/4/2011 à 15h	12/5/2011 à 15h30	< 0,006	< 0,004	< 0,003
FK 6	12/5/2011 à 15h30	18/5/2011 à 15h30	<0,006	< 0,004	< 0,003
FK 7	18/5/2011 à 15h30	22/5/2011 à 15h00	< 0,006	< 0,004	< 0,003

Ces résultats montrent que les traceurs de fission émis lors de l'accident de Fukushima a été détectés dans les quatre filtres prélevés durant la période de 30 mars 2011 au 26 avril 2011.

D'après les valeurs expérimentales obtenus, nous constatons que ;

- La plus grande activité spécifique des produits de fission a été obtenue le 30 Mars 2011. Après cette date, les concentrations d'activité ont diminué jusqu'à atteindre des valeurs inférieures aux limites de détection. Comme nous pouvons également observer à partir de ce tableau, les activités sont généralement inférieures à l'activité minimale détectable à partir du 26 avril 2011 qui est de l'ordre de 0,009, 0,011 et 0,006mBq pour ¹³¹I, ¹³⁷Cs et ¹³⁴Cs respectivement.
- Les activités spécifiques de ¹³¹I ont diminué de 0,507±0,027 mBq/m³ pour l'échantillon FK1 jusqu'à 0,007±0,002 mBq/m³ pour l'échantillon FK4, du 30 mars 2011 au 18 avril 2011.
- La diminution est observée pour les deux autres radionucléides artificiels détecté ¹³⁷Cs et ¹³⁴Cs du 0,043±0,004 mBq/m³ jusqu'à 0,003±0,002 mBq/m³ et de 0,033±0,003 mBq/m³ jusqu'à 0,003±0,002 mBq/m³, respectivement.

- L'activité spécifique de ^{131}I est plus élevée que celle du ^{137}Cs et du ^{134}Cs en raison de sa demi-vie plus courte et ça explique que les retombées de Fukushima étaient riches en ^{131}I , cet élément est plus volatil que le ^{137}Cs .
- Les activités spécifiques sont à l'état de trace parce que la distance et l'effet de bouclier de l'air atténuer les rayonnements.

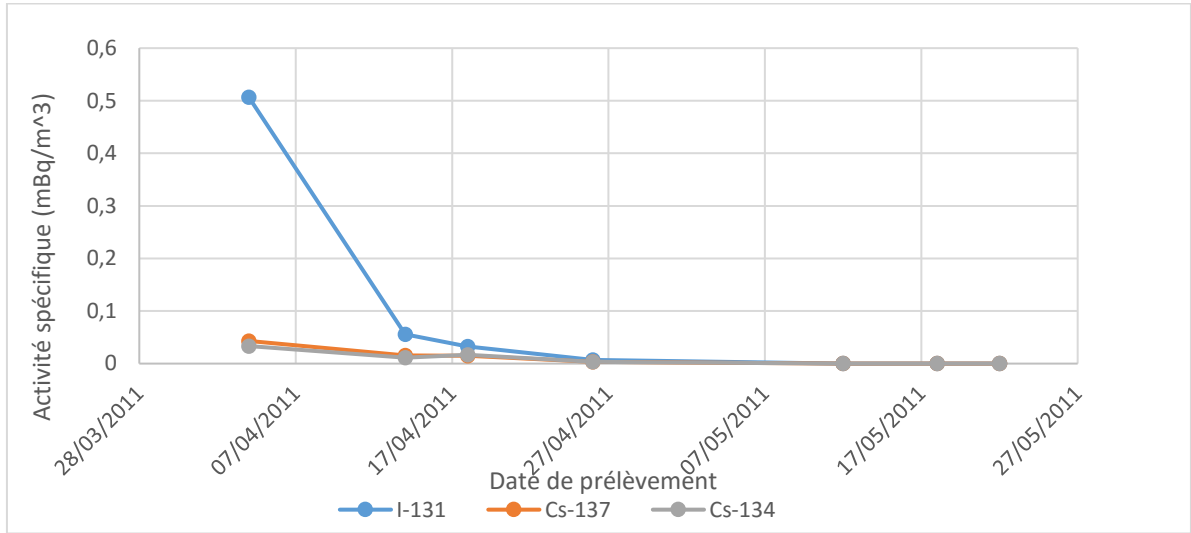


Figure III.5 : Variation temporelle de la radioactivité artificielle dans les filtres de Fukushima.

Les radionucléides artificiels quantifiés dans ces échantillons en cette période sont constatés par d'autres pays (Tableau III.9).

Nous constatons que les activités spécifiques des radionucléides artificiels obtenus au niveau de la région d'Alger (altitude de 162 m), s'inscrivent dans les plages de variation signalés dans les autres pays et pratiquement dans la même période (Tableau III.9).

Tableau III.9 : Donnée référence des Activités spécifiques des radionucléides artificiels trouvées dans les filtres de Fukushima.

Pays	Période	Activités spécifiques			Référence
		¹³¹ I	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	
Algérie	30/03/2011- 26/03/2011	[0,010±0,003- 0,507±0,027] mBq / m ³	[0,005±0,002- 0,043±0,004] mBq / m ³	[0,004±0,002- 0,033±0,003] mBq / m ³	
Monaco	23 /03/2011- 07/05/ 2011	[3.7 ± 1.3 – 354 ± 27] μBq/m ³	[0.7 ± 0.5 – 37 ± 4] μBq/m ³	[0.4 ± 0.2 – 30 ± 2] μBq/m ³	Pham et al., 2012
Grece	24/03/2011- 28/04/2011	490 ± 35 μBq / m ³	180 ± 40 μBq / m ³	160 ± 30 μBq / m ³	Kritidis et al., 2011
France	29/03/2011- 15/04/2011	2364 ± 55 μBq/m ³	198 ± 7 μBq/m ³	167 ± 8 μBq/m ³	Perret et al., 2012
Italie	23/03/2011– 06/05/2011	[23 ± 4 – 410 ± 82] μBq/m ³	[1.6 ± 0.1 – 93 ± 19] μBq/m ³	[1.3 ± 0.3 – 80 ± 16] μBq/m ³	Clemenza et al., 2011
Espagne	28/03/2011– 13/04/2011	2.63 ± 0.12 mBq / m ³	0.09 ± 0.02 mBq / m ³	0.10 ± 0.03 mBq / m ³	Pinero Garcier et al., 2011
Lituanie	24/03/2011– 13/04/2011	[12 – 3700] μBq/m ³	[1.4 – 1040] μBq/m ³		Lujanienė et al., 2011
Portugal	25/03/2011 – 15/04/2011	1.39 ± 0.08 mBq / m ³	0.139 ± 0.017 mBq / m ³	0.153 ± 0.018 mBq / m ³	Carvalho et al., 2012

2.2 Parcours des masses d'air

Dans la présente étude, nous avons utilisé le model HYSPLIT 4 pour caractériser l'origine des masses d'air arrivant sur notre site Alger après l'évènement de Fukushima, c'est-à-dire essayer de poursuivre les fissions radioactives à travers un temps déterminé dans l'espace.

Nous avons analysé l'origine de masses d'air entrantes sur le site d'étude en calculant une cinématique de 96 h à partir de 0, 6, 12 et 18 UTC chaque jour du 30 mars au 26 avril la période où les radionucléides artificiels émis lors de l'accident de Fukushima sont détectés sur Alger. Ils ont été évalués à l'altitude de 162 m au-dessus du niveau du sol avec l'Hybrid Single Trajectoire

intégrée lagrangienne de particules (HYSPLIT, version 4) avec la base de données GDAS développé par l’Air Resources Laboratory (ARL) de la NOAA.

Nous avons également effectué une analyse par classification statique non superposé représentatifs de chaque filtre prélevé pendant l’exposition aux retombées de Fukushima au-dessus d’Alger ; les moyennes des rétrotrajectoires uniquement pour les périodes où les traces de radionucléides artificielles ont été détectées, comme ils sont dans le tableau III.10.

Tableau III.10 : Les valeurs d’analyse par classification statistique non superposé.

Code échantillons	Période	Nombre		
		Jours	Clusters	Trajectoires
FK 1	30/03/2011 – 04/04/2011	6	4	24
FK 2	05/04/2011 – 14/04/2011	10	4	40
FK 3	14/04/2011 – 18/04/2011	5	4	20
FK 4	18/04/2011 – 26/04/2011	9	4	36

Les résultats des rétrotrajectoires obtenus par l’HYSPLIT sont illustrés dans les figures III.6, III.7, III.8 et III.9.

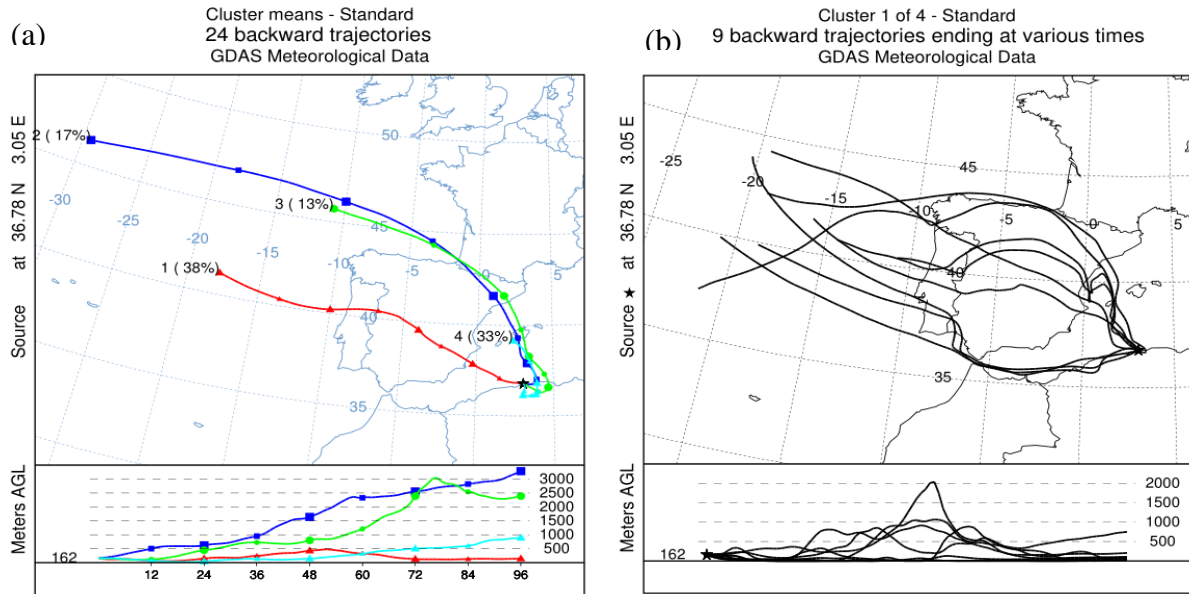


Figure III.6 : *Rétro-trajectoire moyenne (a) avec l'ensemble des rétrotrajectoires du cluster 1 (b) lors du passage du nuage de l'accident de Fukushima sur Alger durant la période allant de 30/03/2011 au 04/04/2011.*

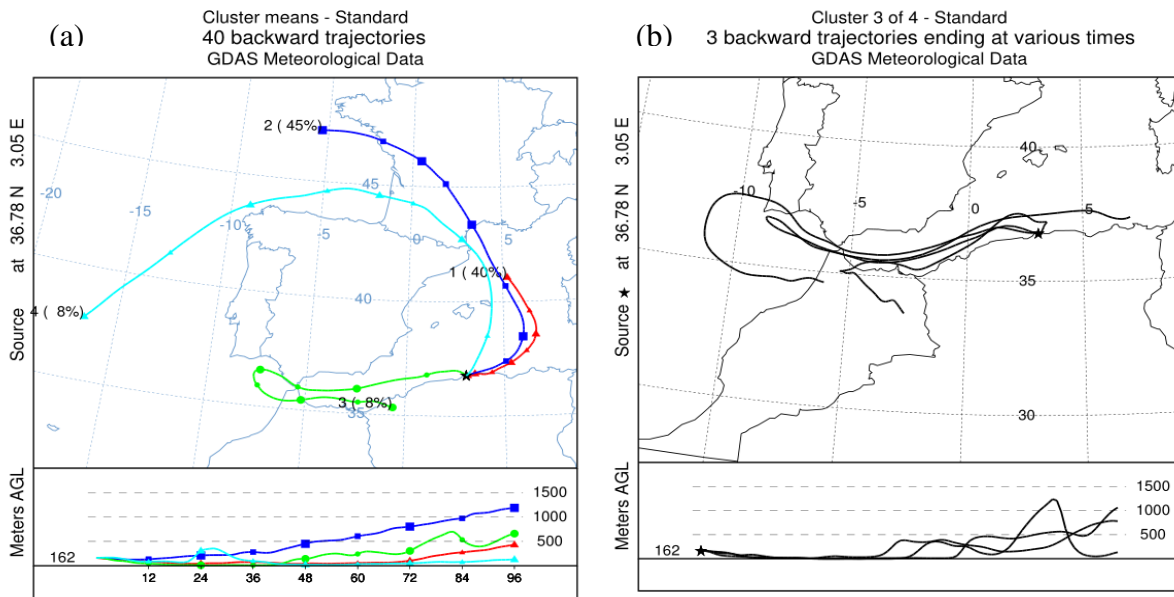


Figure III.7 : *Rétro-trajectoire moyenne (a) avec l'ensemble des rétrotrajectoires du cluster 3 (b) lors du passage du nuage de l'accident de Fukushima sur Alger durant la période allant de 05/04/2011 au 14/04/2011.*

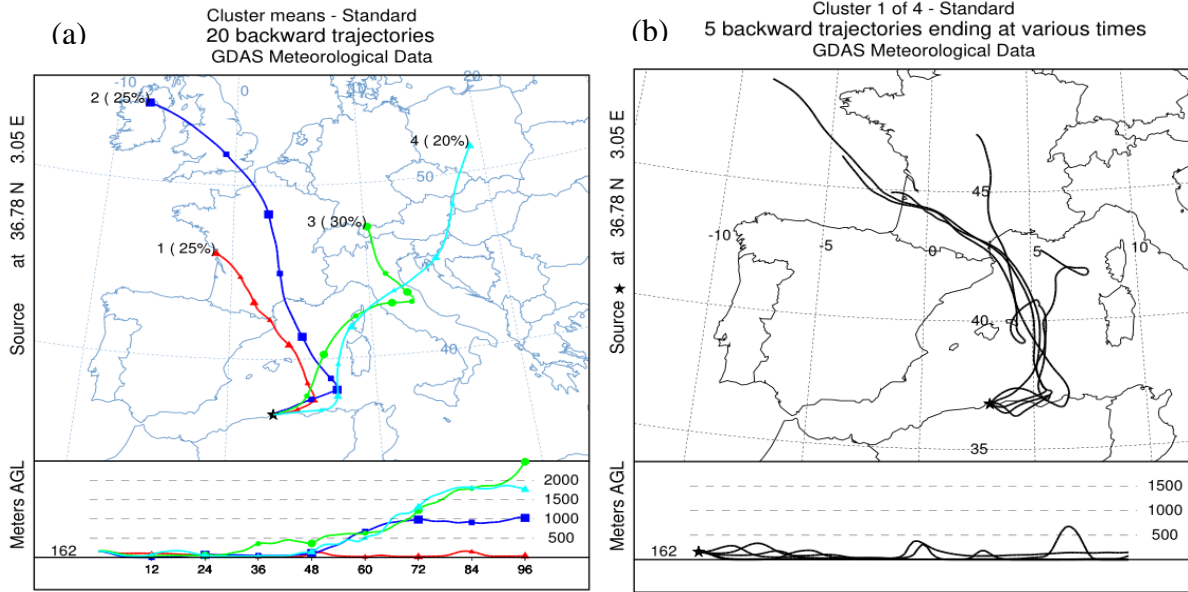


Figure III.8 : *Rétro-trajectoire moyenne (a) avec l'ensemble des rétrotrajectoires du cluster 1 (b) lors du passage du nuage de l'accident de Fukushima sur Alger durant la période allant de 14/04/2011 au 18/04/2011.*

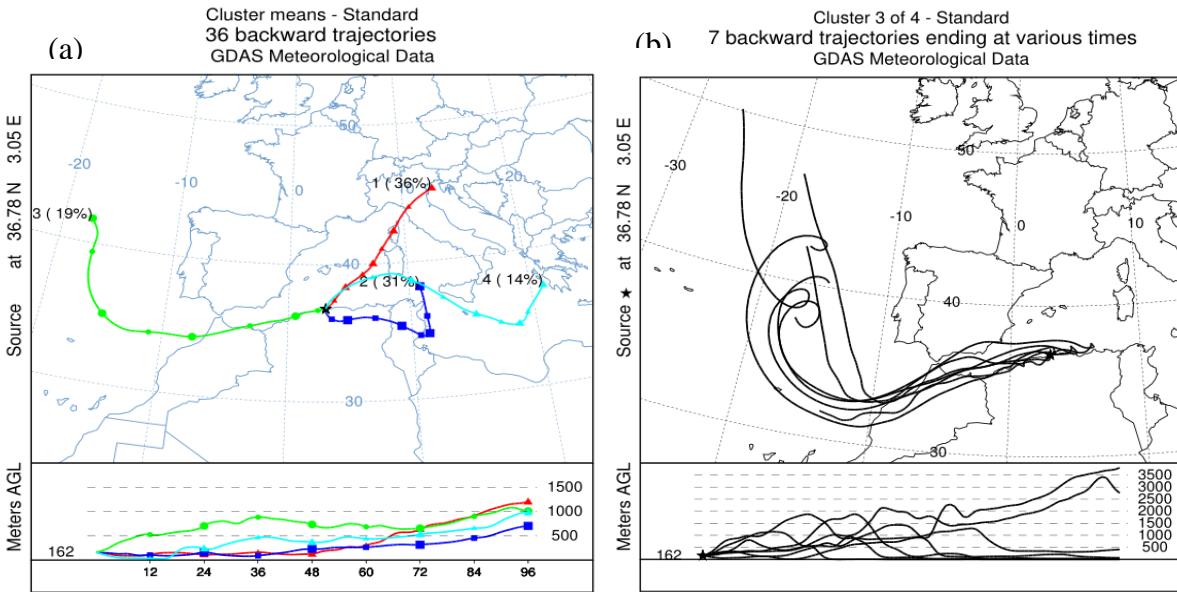


Figure III.9 : *Rétro-trajectoire moyenne (a) avec l'ensemble des rétrotrajectoires du cluster 3 (b) lors du passage du nuage de l'accident de Fukushima sur Alger durant la période allant de 18/04/2011 au 26/04/2011.*

L'analyse des rétrotrajectoires dans cette étude a montré que la quasi une masse d'air provient clairement de l'océan Atlantique passant par la péninsule ibérique.

D'après les travaux de Lazano et al, 2011 et Gracia 2012 les produits de fissions ont été détecté en Espagne le 28 mars 2011. Ces fissions ont été ensuite observées en Algérie deux jours après, le 30 mars 2011.

Dans le travail de Piñero García, il a analysé l'origine des masses d'air entrant sur le site d'étude « Grenada » par le calcul de la cinématique 168-h Rétro-trajectoires 3D à partir de 0, 6, 12 et 18 UTC chaque jour du 9 mars au 19 avril. Ils ont été évalués à trois reprises différentes (500 m, 1000 m et 3000 m d'altitude) en utilisant le système hybride unique trajectoire intégrée des particules lagrangiennes (Hysplit, version 4.9) avec la base de données GDAS comme développé par le laboratoire des ressources atmosphériques (Air Ressources Laboratory, ARL) de la NOAA. Après il a effectué une analyse par grappes de k-means sur les différentes sources des masses d'air pour la période d'échantillonnage.

Et les résultats sont présentés ci-dessous :

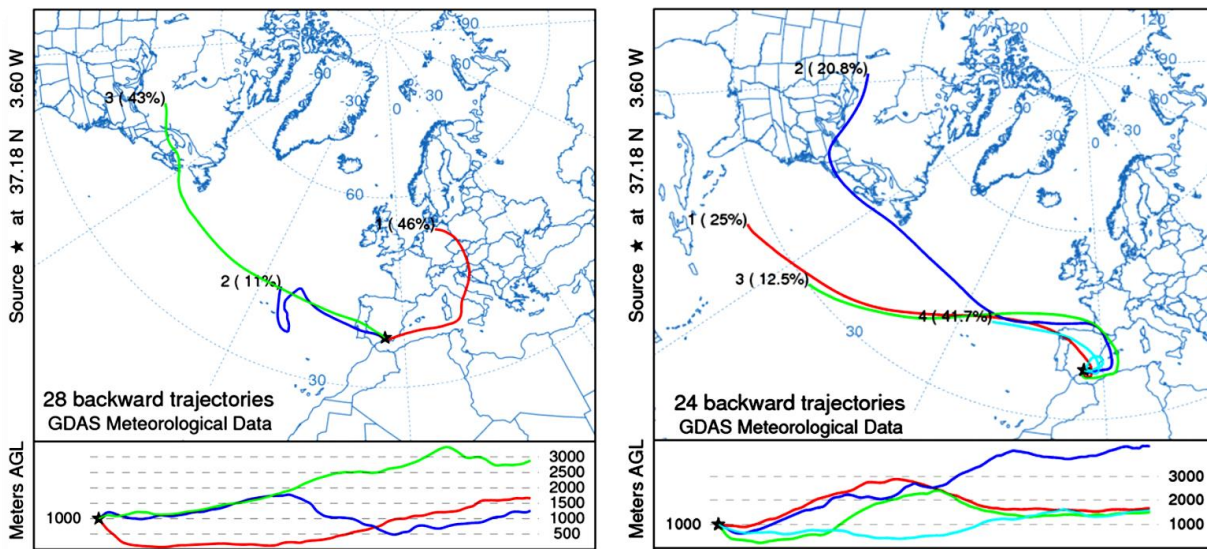


Figure III.10 : *Rétrotrajectoires moyennes représentatives lors de l'exposition aux retombées de Fukushima sur Granada ; gauche : 23 au 30 Mars et droite : 30 Mars au 6 Avril (Piñero García et al., 2012).*

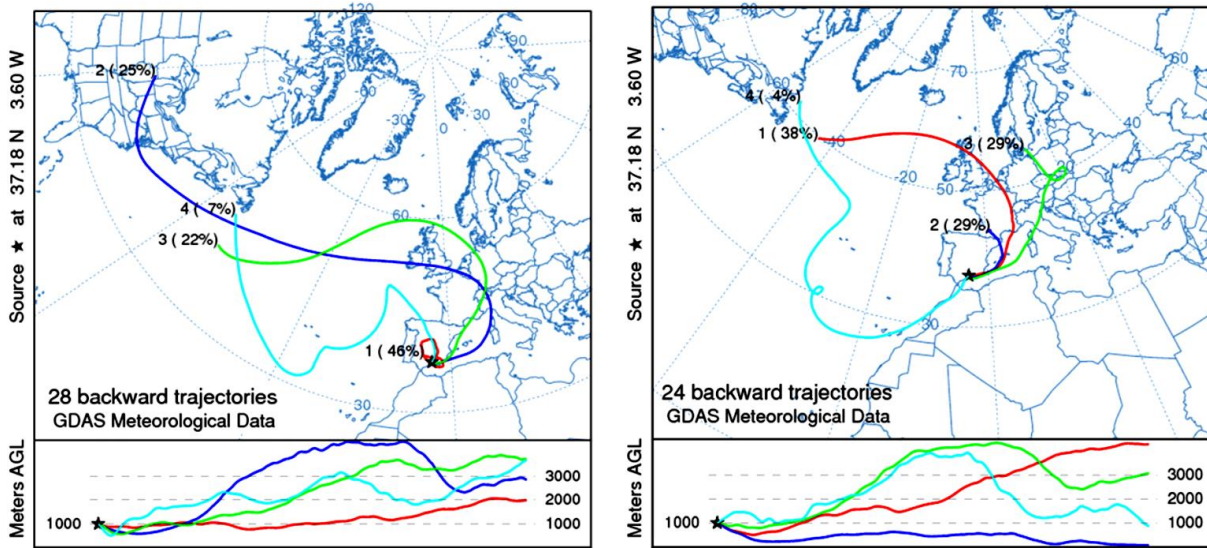


Figure III.11 : *Rétrotrajectoire moyennes représentatives lors de l'exposition aux retombées de Fukushima sur Granada ; gauche : 6 au 13 Avril et droite : 13 au 19 Avril (Piñero García et al.,2012).*

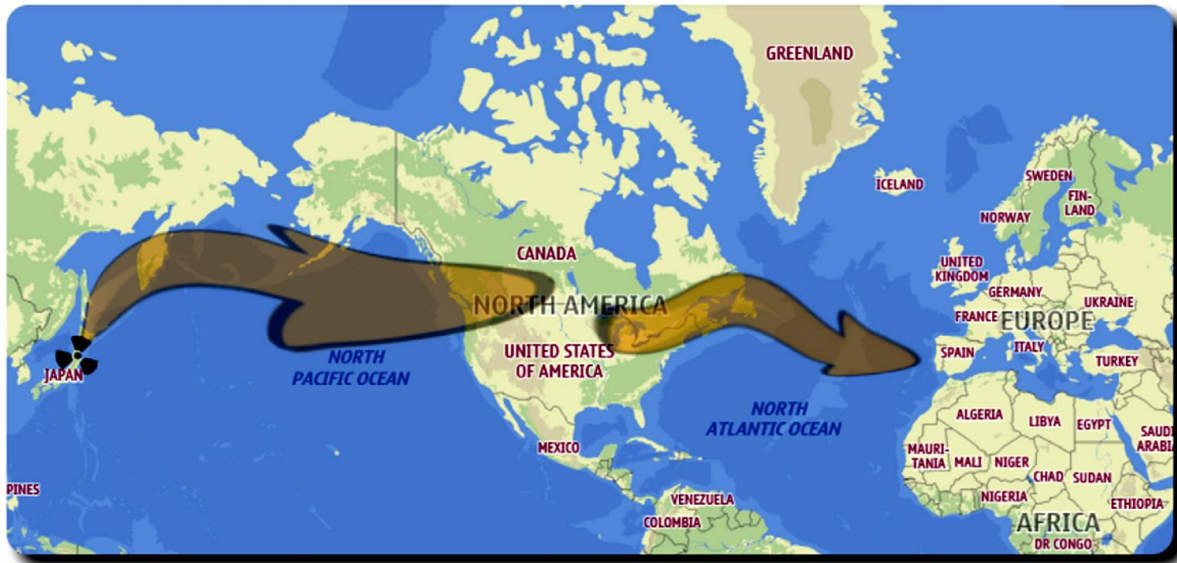


Figure III.12 : *Schéma du déplacement du panache radioactif de Fukushima vers le sud-est de l'Espagne (Piñero García et al.,2012).*

Et d'après l'analyse des rétrotrajectoires qui a été faite par Lazano et al., 2011 et a été confirmée par Piñero García et al en 2012 a montré que les masses d'air ont transporté le nuage radioactif de Fukushima vers l'océan Pacifique et le nord du Japon en direction de l'océan Arctique, du Canada et du nord des États-Unis.

Par la suite, les masses d'air maritime polaires, qui avaient été à mesure que les masses d'air continentales au-dessus de l'Amérique du Nord, ont déplacé le panache radioactif vers l'océan Atlantique en direction du sud-est de l'Espagne (Fig.III.12).

En se basant sur ces deux travaux, nous pouvons confirmer que les radionucléides artificiels détectés sur Alger de 30 mars au 26 avril 2011 sont des produits de fission rejetée lors de l'accident de Fukushima.

3. Surveillance radiologique de compartiment atmosphérique

Les activités spécifiques par unité de masse (Bq/g) ou par unité de volume (Bq/m³) ou bien (Bq/l), ainsi que leurs incertitudes ont été calculées à l'aide des équations (2.3) et (2.6), respectivement.

Les résultats obtenus pour les différents échantillons (aérosols, particules, eau de pluie) sont donnés ci-dessous.

3.1 Aérosols

Les comptages des filtres ont été faits pour avoir une appréciation globale sur le niveau de radioactivité naturelle et artificielle dans l'air.

Après l'analyse des spectres, la radioactivité que nous avons trouvée dans les filtres d'aérosol contient une diversité de radionucléides naturels terrestres provenant essentiellement des chaînes naturelles (²³⁸U, ²³⁵U et ²³²Th), ainsi le radioélément cosmogénique ⁷Be et le ⁴⁰K.

L'exploitation des données d'analyses des spectres d'acquisition (annexe) des radionucléides présents dans nos filtres a permis de calculer les activités et leurs incertitudes, dont les résultats sont mentionnés dans le Tableau III.11.

Tableau III.11 : Activités spécifiques des radionucléides spécifiques dans les aérosols.

Code d'écha	Activité spécifique ($\mu\text{Bq} / \text{m}^3$)									
	^{210}Pb	^{234}Th	^{212}Pb	^{214}Pb	^7Be	^{208}Tl	^{214}Bi	^{137}Cs	^{228}Ac	^{40}K
F1	1064.17 ± 54.58	19.04 \pm 7.44	5.17 ± 1.06	4.33 ± 1.22	6570 $\pm 0,32$	9.85 ± 5.01	3.70 ± 1.08	< 7	6.40 ± 1.86	153.70 \pm 10.85
F2	588.12 ± 30.28	7.22 ± 4.45	2.33 ± 0.62	1.69 ± 0.72	4370 $\pm 0,21$	6.28 ± 3.12	2.83 ± 0.67	< 7	5.32 ± 1.17	93.49 ± 6.63
F3	935.27 ± 48.64	< AMD	4.83 ± 1.10	11.66 ± 1.40	4620 $\pm 0,23$	< AMD	11.23 ± 1.28	< 3	3.54 ± 1.85	119.80 ± 10.01
F4	574.00 ± 36.51	16.57 ± 16.90	11.26 ± 2.46	18.71 ± 2.90	8410 $\pm 0,42$	< AMD	14.46 ± 2.69	< 3	6.15 ± 4.38	246.01 ± 22.36
F5	311.20 ± 21.43	19.61 ± 11.89	8.04 ± 1.66	18.08 ± 2.21	3460 $\pm 0,17$	< AMD	13.04 ± 2.08	< 1,4	9.87 ± 3.34	245.08 ± 18.14
F6	973.70 ± 53.13	47.62 ± 14.29	9.05 ± 2.03	8.06 ± 2.33	8190 $\pm 0,41$	5.23 ± 9.29	5.79 ± 2.05	< 7	15.00 ± 3.63	220.35 ± 18.44
F7	964.17 ± 51.56	26.21 ± 12.10	336.40 ± 17.05	14.48 ± 1.99	4630 $\pm 0,23$	920.17 ± 48.38	11.77 ± 1.79	< 6	< AMD	151.05 ± 13.32
F8	518.41 ± 33.31	< AMD	831.35 ± 41.81	54.34 ± 3.81	6400 $\pm 0,32$	2251.00 ± 115.00	97.76 ± 5.66	< 6	10.35 ± 4.00	147.99 ± 14.90

Les radionucléides quantifiés dans les filtres d'aérosols sont tous d'origine naturelle avec des niveaux d'activités habituellement trouvés.

Radionucléides de la famille d'uranium ^{238}U :

Les activités spécifiques des radionucléides de la famille d'Uranium ^{238}U varient d'un filtre à un autre pour les 8 filtres.

L'activité spécifique du ^{210}Pb varie entre une valeur minimale de $311,2 \pm 24,43 \mu\text{Bq/m}^3$ (filtre 5), et une valeur maximale de $1064 \pm 54,58 \mu\text{Bq/m}^3$ (filtre 1), avec une valeur moyenne $741,13 \pm 41,18 \mu\text{Bq/m}^3$.

Les activités spécifiques du ^{214}Pb varient entre une valeur minimale $1,69 \pm 0,72 \mu\text{Bq/m}^3$ (filtre 2), et une valeur maximale $54,34 \pm 3,81 \mu\text{Bq/m}^3$ (filtre 6) avec une valeur moyenne $16,41 \pm 2,07 \mu\text{Bq/m}^3$.

Les activités spécifiques du ^{214}Bi varient entre une valeur minimale de l'ordre de $2,83 \pm 0,67 \mu\text{Bq/m}^3$ (filtre 2), et une valeur maximale de l'ordre de $97,76 \pm 5,66 \mu\text{Bq/m}^3$ enregistrée dans le filtre 8, avec une valeur moyenne $20,07 \pm 2,16 \mu\text{Bq/m}^3$.

Les activités spécifiques du ^{234}Th varient entre une valeur minimale et une valeur maximale de $7,22 \pm 4,45 \mu\text{Bq/m}^3$ (filtre 2) et $47,62 \pm 14,29 \mu\text{Bq/m}^3$ (filtre 6) respectivement, avec des activités spécifiques inférieures à l'activité minimale détectable dans les filtres 3 et 8.

Radionucléides de la famille de Thorium ^{232}Th

D'après les résultats représentés dans la (Tableau III.11), les activités spécifiques des radionucléides des descendants du ^{232}Th (^{212}Pb , ^{228}Ac et ^{208}Tl) sont variées pour les huit filtres.

Les activités spécifiques du ^{212}Pb et du ^{228}Ac varient entre une valeur minimale de l'ordre de $2,33 \pm 0,62$ (filtre 2) et $3,54 \pm 1,85 \mu\text{Bq/m}^3$ (filtre 3), et une valeur maximale de l'ordre de $831,35 \pm 41,81$ (filtre 8) et $15,00 \pm 3,63 \mu\text{Bq/m}^3$ (filtre 6) respectivement, avec une valeur moyenne de l'ordre de $151,05 \pm 8,47 \mu\text{Bq/m}^3$ pour le ^{212}Pb et une activité spécifique non détectée au niveau de filtre 7 pour l' ^{228}Ac .

Les activités spécifiques du ^{208}Tl fluctuent entre une valeur minimale $5,23 \pm 9,29 \mu\text{Bq/m}^3$ (filtre 6), et une valeur maximale $2251,00 \pm 115 \mu\text{Bq/m}^3$ (filtre 8) avec des activités spécifiques non détectées (inférieure à l'activité minimale détectable) dans les filtres 3, 4 et 5.

Activités spécifiques du ⁷Be

L'activité spécifique du ⁷Be est comprise entre une valeur minimale $3,46 \pm 0,17$ mBq/m³ (filtre 5), et une valeur maximale $8,41 \pm 0,42$ mBq/m³ (filtre 4), avec une valeur moyenne de $5,83 \pm 0,28$ mBq/m³ enregistrée au niveau de la région d'Alger (altitude de 162m).

Activités spécifiques du ⁴⁰K

Les activités spécifiques du ⁴⁰K varient entre une valeur minimale de l'ordre de $93,49 \pm 6,63$ µBq/m³ (filtre 2), et une valeur maximale de l'ordre de $246,01 \pm 22,36$ µBq/m³ (filtre 4) avec une valeur moyenne $172,18 \pm 14,33$ µBq/m³.

Les niveaux d'activités en ⁷Be et ²¹⁰Pb s'inscrivent dans les plages de variations habituellement constatées dans d'autre pays (Tabl.III.12).

Tableau III.12 : Donnée référence des Activités spécifiques des radionucléides spécifiques dans les aérosols.

Pays	²¹⁰ Pb (µBq/ m ³)	⁷ Be (mBq / m ³)	Référence
Monaco	500 – 1000	2,9 – 8,1	Pham et al., 2002
Algérie	91 – 883	1.58 – 8.32	Taeib errahmani et noureddine, 2016
Malaga, Spain	/	2.5 – 14.9	Deunas et al., 2009
Granada, Spain	/	1.7 – 7.6	Azahra et al., 2003
Thessaloniki, Grèce	/	0.47 – 12.7	Ioannido et al., 2006
France	/	1.73 – 7.73	Bourcier et al., 2011
Monaco	/	0.93 – 13.1	Pham et al., 2011
Barcelona, Spain	/	2.4 – 4.7	Vallés et al., 2009

/ : pas de donnée

Les activités spécifiques qui ne sont pas été détectés pour certains radionucléides, dans certains filtres sont due peut-être à la durée d'attente pendant quelques jours avant d'effectuer l'analyse ce qui va laisser décroître suffisamment des radionucléides à vie courte ($T_{1/2} (^{208}\text{Tl}) = 3,058$ min). Et dans certain filtre peut être à la valeur d'activité qui est inférieure à celle de l'activité minimale détectable.

L'activité spécifique de ^7Be [3,46 -8,41 mBq/m³] est d'origine cosmogénique, le flux de ^7Be à la surface de la terre dépend seulement de la latitude et quel que soit le milieu océanique ou continentale.

Au contraire de ^7Be , l'activité spécifique de ^{210}Pb [300-1000 $\mu\text{Bq}/\text{m}^3$] est d'origine terrestre, la concentration de ce dernier dans l'air diminue avec l'altitude ceci due à la diminution de la concentration de ^{222}Rn .

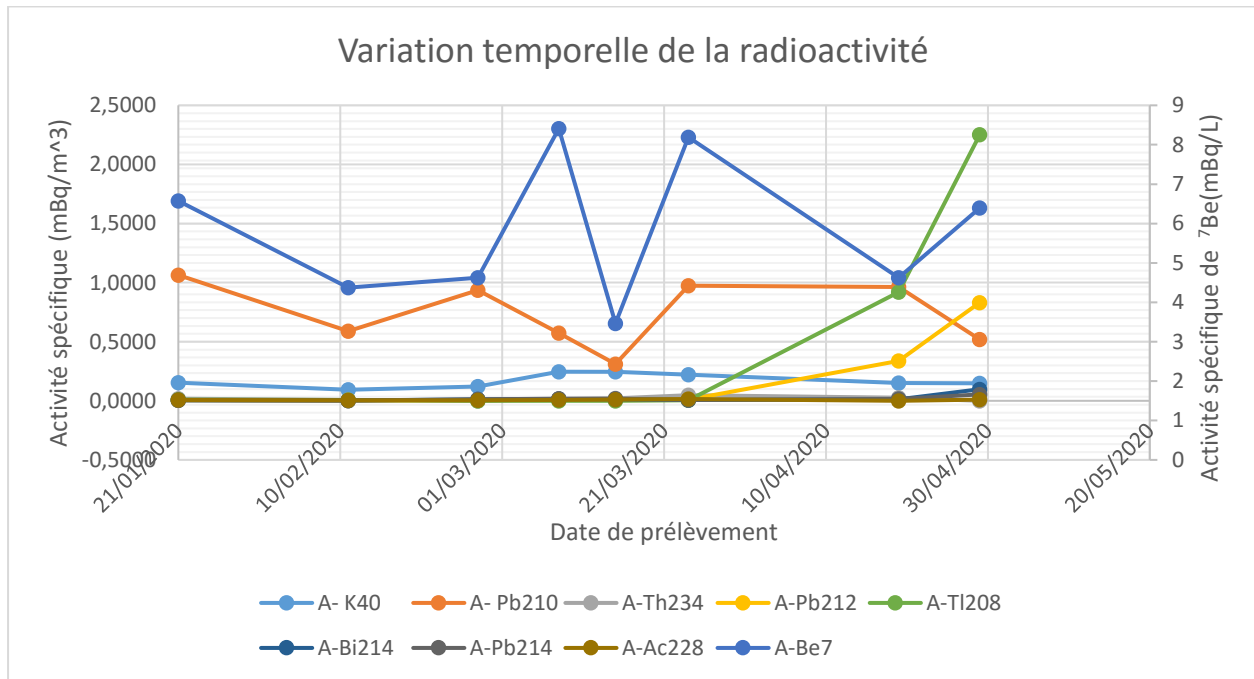


Figure III.13 : Des activités des radionucléides dans les aérosols.

3.2 Particules

Le dépouillement des spectres des échantillons des particules et à l'aide des équations (2.3) et (2.6), les activités spécifiques des radionucléides d'intérêt et leurs incertitudes sont résumées dans le Tableau III.13.

Tableau III.13 : Activités spécifiques des radionucléides spécifiques dans les particules.

ech	Activité spécifique (mBq/g)									
	²¹⁰ Pb	²³⁴ Th	²¹² Pb	²¹⁴ Pb	⁷ Be	²⁰⁸ Tl	²¹⁴ Bi	¹³⁷ Cs	²²⁸ Ac	⁴⁰ K
P 1	745,1	41,57±	69,8	56,31	3053,3	17,97	51,01	16,90±	51,84	731,1
	±44,0	19,74	±4,96	±4,90	±159,3	±2,09	±4,77	1,76	±7,27	±49,7
P 2	1803,34	25,46	49,62	47,76	2512	4,70	41,20	8,40	23,26	324,3
	±99,09	±26,0	±4,61	±5,69	±130,8	±2,43	±5,63	±1,77	±8,80	±40,7
P 3	2242,6	4,43	32,13	11,67	19967	6,46	9,32	8,46	13,09	284,03
	±115,6	±15,85	±3,02	±2,98	±1000,5	±1,34	±2,69	±0,98	±4,36	±24,3

Les résultats trouvés sont comparables à celle de Pham et al., 2002 et de Papastefanou et al., 2000 (Tableau III.14).

Tableau III.14 : Données de référence des activités spécifique des radionucléides dans les particules.

Pays	Activité spécifique (mBq/g)				Référence
	²¹⁰ Pb	⁷ Be	¹³⁷ Cs	⁴⁰ K	
France, Monaco	10966,6 ±0,4	9513,3 ±0,7	34,23 ± 0,76	/	Pham et al., 2002
Thessaloniki, Grèce	/	4580±40	26,6±4,4	488±7	Papastefanou et al.(2000)

• **Radionucléides de la famille d'uranium ²³⁸U :** ²¹⁰Pb, ²¹⁴Pb, ²³⁴Th et ²¹⁴Bi

Toutes les valeurs minimales des activités spécifiques du ²¹⁴Pb, ²³⁴Th et ²¹⁴Bi sont enregistrées au niveau de l'échantillon P3, et sont d'ordre 11,67±2,98 ; 4,43±15,85 ; 9,32±2,69 mBq/g, respectivement.

Les valeurs maximales sont toutes enregistrées dans l'échantillon P1, et sont de l'ordre de 56,31±4,90 ; 41,47±19,74 ; 51,01±4,77 mBq/g, respectivement.

Au contraire du ^{214}Pb , ^{234}Th et ^{214}Bi , les activités spécifiques du ^{210}Pb compris entre une valeur minimale $745,1\pm 44$ mBq/g (P1), et une valeur maximale $2242,6\pm 115,6$ mBq/g (P3), avec une valeur moyenne de $1597\pm 86,23$ mBq/g enregistrée au niveau de la région d'Alger.

- **Radionucléides de la famille de Thorium ^{232}Th**

Les activités spécifiques du ^{212}Pb , ^{208}Tl et ^{228}Ac varient entre des valeurs minimales $32,13\pm 3,02$; $6,46\pm 1,46$; $13,09\pm 4,36$ mBq/g, toutes captées au niveau d'échantillon P3, et des valeurs maximales $69,8\pm 4,96$; $17,97\pm 2,09$; $51,84\pm 7,27$ mBq/g, toutes captées dans l'échantillon P1, avec des valeurs moyenne de l'ordre de $50,51\pm 4,19$; $9,71\pm 1,95$; $29,39\pm 6,81$ mBq/g, respectivement.

- **Activités spécifiques du ^7Be**

Le même cas du ^{210}Pb , l'activité spécifique du ^7Be compris entre une valeur minimale $2512,12\pm 130,8$ mBq/g (P2), et une valeur maximale 19967 ± 1000 mBq/g (P3), avec une valeur moyenne de l'ordre de $8510,76\pm 430,05$ mBq/g.

- **Activités spécifiques du ^{137}Cs**

Au contraire du ^7Be , l'activité spécifique du ^{137}Cs varie entre une valeur minimale $8,40\pm 1,77$ mBq/g (P2), et une valeur maximale $16,90\pm 1,76$ mBq/g (P1) avec une valeur moyenne de l'ordre de $11,25\pm 1,50$ mBq/g.

- **Activités spécifiques du ^{40}K**

Les activités spécifiques du ^{40}K varient entre une valeur minimale $284,03\pm 24,3$ mBq/g (P3), et une valeur maximale $731,1\pm 49,7$ mBq/g (P1), avec une valeur moyenne de l'ordre de $446,47\pm 38,23$ mBq/g.

Nous constatons que les activités spécifiques du ^{210}Pb , ^7Be , ^{137}Cs et ^{40}K s'inscrivent dans les plages de variations habituellement trouvées par Pham, 2002 et Papastefano et al, 2000.

La présence du ^{210}Pb due à la décroissance du ^{222}Rn dans l'atmosphère en ^{210}Pb qui se fixe sur les particules, il est déposé sur la table de collecte par les retombées sèches et humides.

L'activité spécifique du ^{137}Cs varie dans les particules, l'activité élevée du ^{137}Cs enregistrée dans l'échantillon P1. Cette variation est expliquée par les conditions météorologiques locales, ainsi que par la différence de masse entre les échantillons des particules.

Le ^{137}Cs détecté dans les particules serait probablement dû à sa rémanence dans le compartiment atmosphérique affectée par les processus de remise en suspension, d'adsorption sur des particules fines et de transport sur des longues distances (Taieb errahmani et Hammadi, 2020).

Les variations des activités spécifiques des radionucléides trouvés dans les échantillons des particules au cours du temps sont représentées dans des courbes illustrées dans la figure III.14.

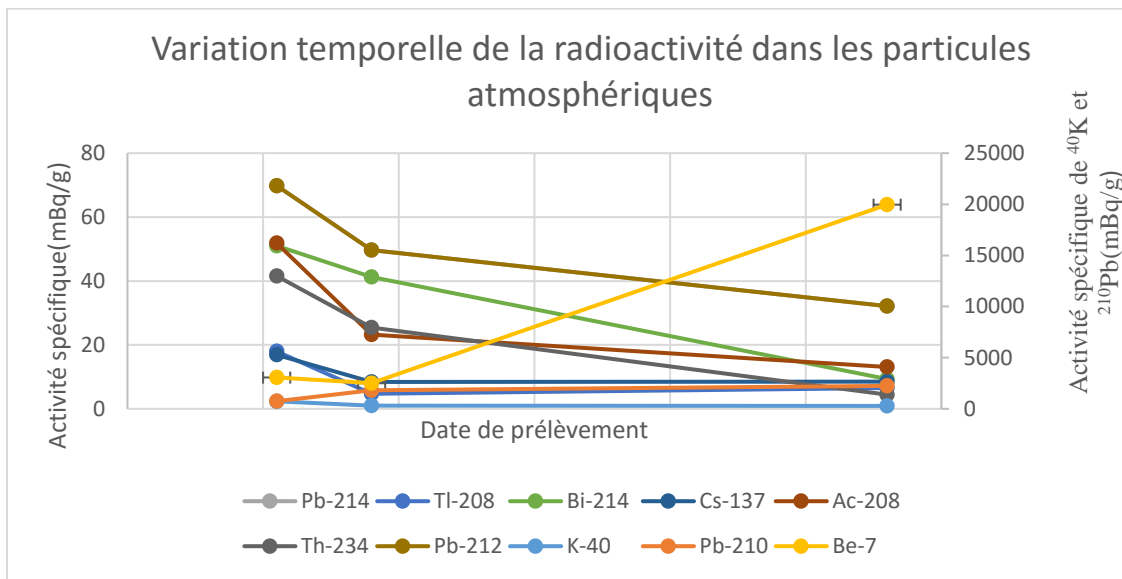


Figure III.14 : Activités spécifiques des radionucléides dans les échantillons de particules atmosphériques.

3.3 Eau de pluie

L'analyse des spectres des échantillons des eaux de pluie et à l'aide des équations (2.3) et (2.6), les activités spécifiques des radionucléides d'intérêt et leurs incertitudes sont résumées dans le Tableau III.15.

Tableau III.15 : Activités spécifiques des radionucléides spécifiques dans les eaux de pluie.

Code Ech	Activité spécifique (Bq/L)									
	²¹⁰ Pb	²³⁴ Th	²¹² Pb	²¹⁴ Pb	⁷ Be	²⁰⁸ Tl	²¹⁴ Bi	¹³⁷ Cs	²²⁸ Ac	⁴⁰ K
EP 1	0,34± 0,74	3,18± 0,38	0,42± 0,07	1,38± 0,2	0,19± 0,13	0,12± 0,02	0,14± 0,04	< 0,007	0,25± 0,06	3,67± 0,30
EP 2	1,21± 0,71	3,6± 0,4	0,14± 0,04	0,02± 0,05	0,87± 0,15	0,12± 0,02	0,19± 0,04	< 0,007	0,28±0 ,06	4,08± 0,32
Pham, 2002	0,96± 0,03	/	/	/	3,55± 0,16	/	/	/	/	/

D'après les résultats obtenus, nous constatons que ;

Les radionucléides quantifiés dans les échantillons d'eau de pluie sont tous d'origine naturelle avec des niveaux d'activités habituellement trouvés.

Les deux échantillons ont pratiquement les mêmes ordres des grandeurs.

Les radionucléides de la famille de ²³⁸U (²¹⁴Bi, ²³⁴Th), ainsi que de la famille ²³²Th (²²⁸Ac et ²⁰⁸Tl), ils ont pratiquement les mêmes niveaux d'activité spécifique dans les deux échantillons.

Les valeurs maximales des activités spécifiques de ²¹²Pb et de ²¹⁴Pb sont enregistrées au niveau de l'échantillon EP1. Et elles sont de l'ordres de 0,42±0,07 Bq/L et 1,38±0,2 Bq/L respectivement.

Par contre, les activités spécifiques du ²¹⁰Pb, ⁷Be et de ⁴⁰K enregistrées au niveau d'échantillon EP2 sont plus élevées que celles trouvées au niveau de l'échantillon EP1, et elles sont de l'ordres de 1,21±0,71 Bq/L, 0,87±0,15 Bq/L et 4,08±0,32 Bq/L respectivement.

Le ²¹⁰Pb et le ⁷Be ont le même comportement dans les eaux de pluie (Pham et al., 2002).

Les activités spécifiques trouvées de ²¹⁰Pb et de ⁷Be sont comparables à celle trouvés par Pham, 2002.

L'activité totale (Bq) d'un radionucléide dans l'eau de pluie dépend de la masse de particules d'aérosol récupérées, de volume d'eau de pluie dans lequel elles se trouvent accumulé et de taux de précipitation (Ioannidou et Papastefanou, 2006).

La concentration d'activité (Bq/L) d'un radionucléide dans l'eau de pluie est une quantité indépendante de la hauteur des précipitations (Ioannidou et Papastefanou, 2006).

L'activité spécifique de ^7Be dans l'eau de pluie augmente lorsque le taux de précipitation diminue (Ioannidou et Papastefanou, 2006).

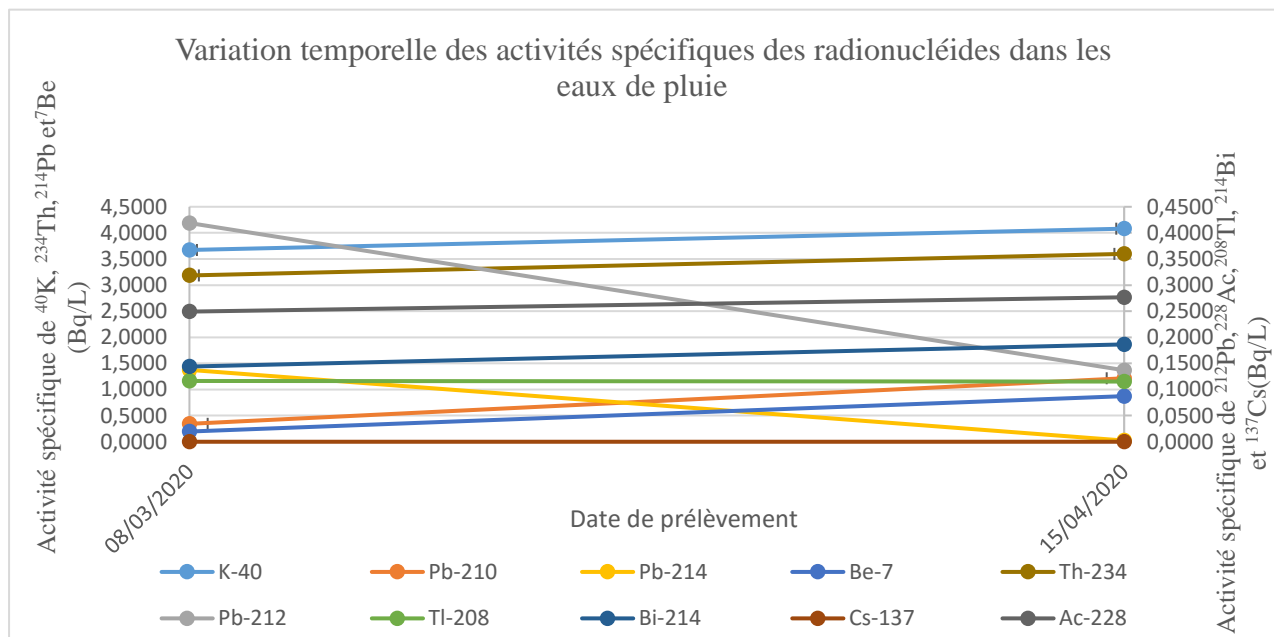


Figure III.15 : Activités spécifiques des radionucléides dans les échantillons d'eau de pluie.

4. Analyses complémentaires de la radioactivité

4.1 Composition chimique par EDXRF

Après l'analyse des échantillons des particules par la technique de fluorescence X et à l'aide de l'équation (2.8), nous avons obtenu les résultats représentés ci-dessous.

L'analyse de fluorescence par rayonnement X des particules collectées de 08 janvier 2020 jusqu'à 15 avril 2020 montre qu'elles sont principalement constituées de Si, Ca, Fe, Mg et Cl.

Les éléments traces sont également présents comme Mn, Sr, Ba, Zn, Cr, P et Ni.

Les concentrations de tous les éléments sont pratiquement de même ordre de grandeur dans les trois échantillons. Et ils sont comparables à celles qui ont trouvés par Pham, 2002 en Monaco, à part quelques éléments comme le Ba, P, Co, Cu, As et le Pb.

Tableau III.16 : Composition chimique des particules atmosphériques collectées et comparaison avec les travaux à Monaco.

élément	Concentration (µg/g)			
	P 08 / 01 /2020	P 01/ 03 /2020	P 15 / 04 /2020	Pham et al., 2005
Si	168819,50	159741,10	113700,06	149400
Ca	40914,86	101563,75	38227,59	55400
Fe	42633,63	30945,84	37408,11	39000
Cl	7059,00	12866,00	33680,16	
Al	30591,17	11406,87	7167,42	53800
K	13329,19	11668,49	10113,86	15420
Mg	7975,83	8245,21	8740,86	
Ti	8270,22	6318,79	7704,16	4210
Ba	5078,67	4069,80	4717,60	451
S	778,44	1910,88	1303,40	1040
Na	329,74	571,82	487,93	
P	497,26	427,91	377,15	184
Mn	394,29	423,77	460,70	496
As	409,89	421,46	446,78	6,9
Zr	316,02	312,58	222,88	188
Sr	248,23	299,74	206,34	207
Zn	98,35	176,19	220,38	204
Ni	101,90	72,58	113,82	59,8
Rb	110,98	75,75	94,43	78,9
Pb	93,58	92,96	101,64	45
V	82,42	85,33	72,57	118
Cr	68,62	68,00	78,67	195
Y	54,84	23,88	30,48	
Nb	38,44	21,90	34,28	
Th	20,61	9,08	16,75	
Se	10,17	10,16	8,24	
Cu	7,94	10,11	8,01	87
Br	10,07	8,65	14,53	
Co	9,60	5,74	9,12	25,3
Ga	8,33	10,27	4,22	
Cs	8,73	5,79	8,41	
Mo	5,46	6,26	5,43	
Sc	2,19	5,23	2,01	
U	5,18	3,53	4,11	
Hg	0,06	0,05	0,04	
Tl	0,002	0,004	0,003	

Et pour mieux interpréter ces résultats les concentrations des éléments sont normalisées par rapport à la moyenne et représenté dans un graphe (Fig.III.16).

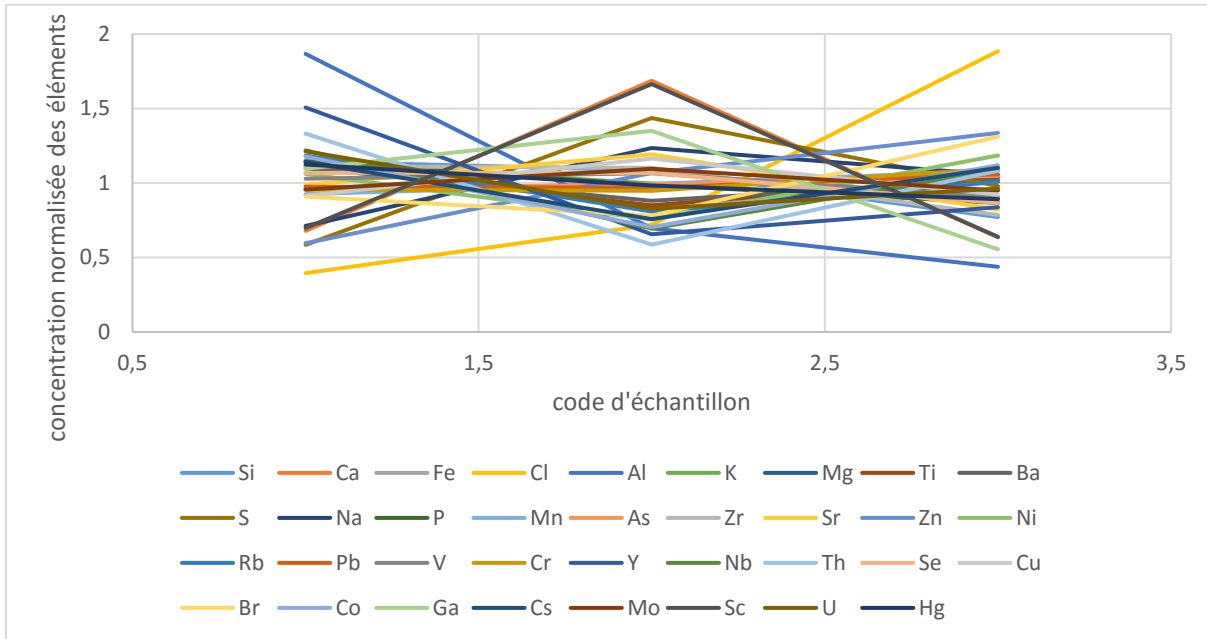


Figure III.16 : Distributions normalisées des concentrations des espèces chimiques dans les particules.

Les trois échantillons prélevés ont une distribution des compositions chimiques pratiquement homogène.

4.2 Matière organique

La teneur de la matière organique dans les échantillons des particules est calculée à l'aide de l'équation (2.9) et les résultats obtenus sont présentés dans le tableau III.17.

Tableau III.17 : La teneur de la matière organique des particules atmosphérique.

code Ech	Date de collecte	Masse sèche(g)	Poids avant calcination (g)	poids après calcination (g)	teneurs de MO(%)
P1	08/01/20	1,8202	67,6019	67,4295	9,47
P2	01/03/20	1,6926	75,3662	75,0653	17,78
P3	15/04/20	1,91	75,5303	74,493	54,31

La plus basse teneur en matière organique est de 9,47% analysé dans l'échantillon des particules (P1) alors que la teneur maximale atteint 54,31% dans l'échantillon (P3).

L'élévation de la teneur en matière organique dans l'échantillon collecté en 15 avril 2020 est du peut être au feu de forêt de Tchernobyl qui a été lieu le 04 avril 2020.

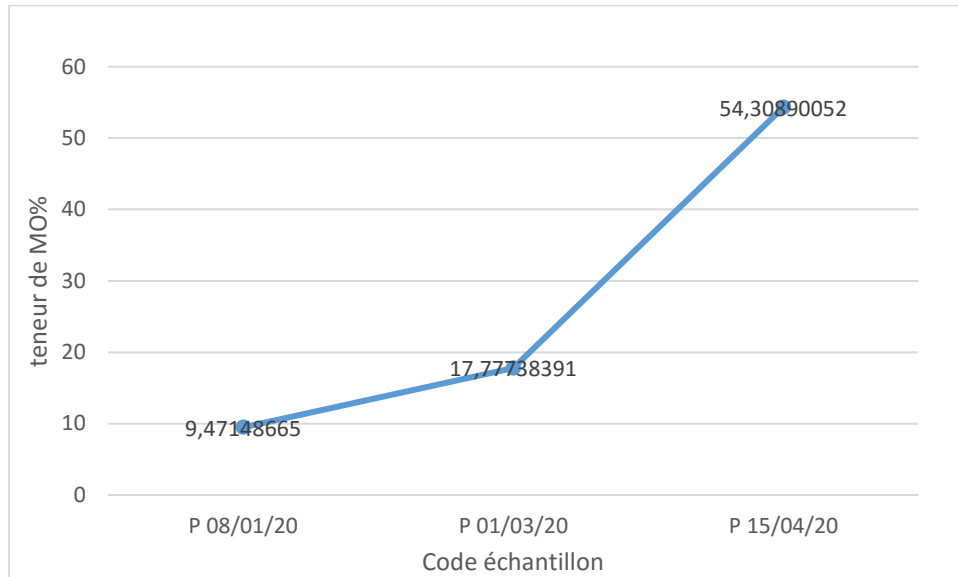
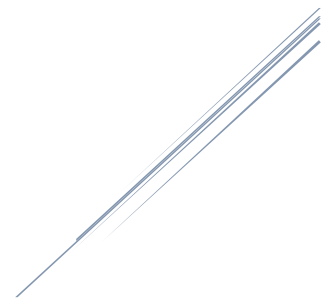


Figure III.17 : *Courbe de la teneur en matière organique des particules atmosphérique.*

En atmosphère, les particules résultent de la remise en suspension du sol. Les composés organiques du sol possèdent des fonctions alcool -OH et acides carboxyliques -COOH qui, en s'ionisant, sont susceptibles de fixer des cations. Ces dissociations confèrent aux substances organiques des capacités d'échange très élevées de l'ordre de 200 à 400 meq/100 g (Bonneau, 1979; Chamayou, 1989; Robeau et al., 2000).

Ce phénomène est primordial dans le cas des sols dits « organiques » pour lesquels les acides humiques et les acides fulviques résultant de la décomposition de la matière organique neutralisent la charge des cations, ce qui empêche leur fixation sur les argiles (Dumat, 1995).

Conclusion



Conclusion

De par sa position géographique, l'Algérie, comme tous les pays de la région méditerranéenne, n'est pas à l'abri de toute contamination radioactive venant des pays nucléarisés à travers les accidents nucléaires.

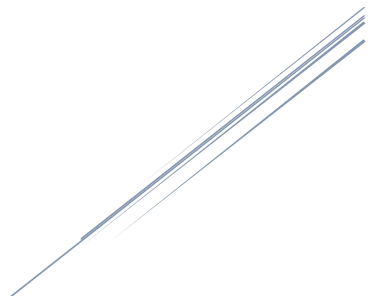
Ce travail a été réalisé dans le cadre de la surveillance radiologique de l'environnement en général et celui de l'Atmosphère en particulier. Il a abordé cet aspect de surveillance durant le premier trimestre de l'année 2020, ce qui est considéré comme continuité des travaux menés au laboratoire de l'environnement du CRNA (Taieb Errahmani, 2020). Les analyses des échantillons du compartiment atmosphérique ont été effectuées par spectrométrie gamma pour la détermination du niveau de radioactivité et par fluorescence à rayons X pour la détermination de la composition chimique. Une approche de modélisation des parcours des masses d'air a été aussi réalisée à l'aide du code HYSPLIT 4 de l'Administration Nationale de l'Océan et de l'Atmosphère (NOAA). Ce dernier a permis de tracer les rétro-trajectoires des masses d'air véhiculant la radioactivité artificielle issue de l'accident de Fukushima en Mars 2011 au Nord de l'Algérie durant le mois d'avril 2011.

A la lumière des résultats de la caractérisation radiologique et la modélisation des rétrotrajectoires de l'accident de Fukushima, nous pouvons déclarer que :

- Le monitoring de la radioactivité naturelle dans les aérosols a révélé des activités spécifiques moyennes des radionucléides ^7Be et ^{210}Pb de l'ordre de $5,83 \pm 0,28 \text{ mBq/m}^3$ et $741,13 \pm 41,18 \text{ mBq/m}^3$, respectivement. Ces résultats sont similaires aux résultats de Taieb errahmani et Nourredine en 2016 au site d'Alger.
- Ces deux radionucléides sont aussi présents dans les échantillons de particules et eaux de pluies avec des activités spécifiques élevées aux particules par rapport aux aérosols. Les activités spécifiques du ^7Be et ^{210}Pb pour les particules sont respectivement $8510,76 \text{ mBq/g}$ et 1597 mBq/g tandis que pour les eaux de pluies sont de $1,06 \text{ Bq/l}$ et $0,77 \text{ Bq/l}$.
- L'activité de radionucléide artificiel ^{137}Cs a été inférieure à l'activité minimale détectable dans les aérosols et dans les eaux de pluie, ce qui est en accord avec le résultat trouvé dans les travaux de Taieb errahmani (2020) au niveau du site d'Alger durant la période allant du 2012 au 2018.
- Le ^{137}Cs a été détecté uniquement dans les particules atmosphériques avec une activité spécifique moyenne de l'ordre de $0,011 \pm 1,5 \text{ Bq/g}$. Les feux de forêt de Tchernobyl en

- Urkaine combinés avec les conditions météorologiques ont entraîné la remise en suspension du ^{137}Cs et son transport sur de longue distance, ce qui a permis de sa détection au site d'Alger durant le mois d'Avril 2020, et qui a fait l'objet d'un rapport interne de l'évènement au CRNA avec la modélisation des rétro-trajectoires.
- Les traces des produits de fission ^{131}I , ^{134}Cs et ^{137}Cs détectées dans le site d'Alger, durant la période de 30 mars au 26 avril 2011 sont de l'ordre de 0,15 mBq/g, 0,016 mBq/g et 0,075 mBq/g, respectivement.
- Les masses d'air arrivant au site d'Alger durant le mois d'avril 2011 proviennent clairement de l'océan atlantique en passant par la péninsule ibérique. D'après les travaux de Péniro Gracia (2012), le nuage radioactif a été transporté de Fukushima vers l'Océan pacifique et nord du Japon en direction de l'océan Arctique, Canada et nord des États-Unis. Plus tard, les masses d'air d'origine marines polaires, qui ont transporté ce nuage vers l'océan Atlantique, puis ils sont passé au-dessus du sud-est de l'Espagne.
- La composition chimique des particules atmosphériques a révélé la dominance des éléments chimiques Si, Ca, Fe, Mg et des éléments traces sont également détectés ; Mn, Sr, Zn, Cr...ect.
- L'élément le plus dominant dans les particules est la silice de l'ordre de 147,42022 (mg.g^{-1}).
- Le pourcentage de la matière organique dans les particules atmosphériques varie entre 9,47% et 54,31%.

*Références
Bibliographiques*



Références bibliographiques

AIEA, (1989). *Measurement of Radionuclides in Food and the Environment a Guidebook*, International Atomic Agency. VIENNA, 1989 IAEA, STI/DOC/10/295, ISBN 92-0-125189-0, ISSN 0074-1914.

ARNALDS O., CUTSHALL N-H. ET NIELSEN G-A. (1989). *Cesium-137 in Montana soils*. Health Physics, 57 (6), U.S.A: pp 955-958.

AZAHRA M., CAMACHO GRACIA A., GONZALEZ GOMEZ C., LOPEZ PENAIVER J-J., EL BADROUNI T., (2003). *Seasonal ⁷Be concentrations in near-surface air of Granada (Spain) in the period 1993–2001*. Applied Radiation and Isotopes, 59(3): pp 159-164.

BAKHTI N. ET BAKIR N., (2013). *Evaluation de l'émanation du radon dans les échantillons de l'environnement, suite à un équilibre séculaire avec ses descendants, en utilisant la technique de spectrométrie gamma*. Mémoire de fin d'étude à USTHB : 61p.

BELAIDI D., (2017). *Détection, identification des aérosols et estimation de leur teneur radiatif direct : Application à la région de Tizi-Ouzou*. Thèse de doctorat de 3^o cycle.

Université Mouloud Mammeri (Tizi-ouzou): 124p.

BELARBI N., (2019). *Etude de la pollution atmosphérique par les particules et les métaux lourds (Cr, Zn, Cd.....) au niveau de la ville d'Alger*. Thèse de doctorat. Université Abou-bekrBelkayed (Tlemcen) : 117p.

BELHARET M., (2015). *Modélisation numérique du transfert du radio césium dans les chaînes trophiques pélagiques marines suite à l'accident nucléaire de Fukushima Dai-ichi (Côte Pacifique du Japon)*. Thèse de doctorat. Université de TOULOUSE (3 Paul Sabatier) :173p.

BEN TEKAYA M., (2009). *Préparation d'un matériau de référence pour la mesure de la radioactivité naturelle*. Mémoire pour l'obtention du Mastère de Chimie Physique. Université du 7 NOVEMBRE (CARTHAGE) :106p.

BOLLER R., BRAUN S., MILES J. et LAIDLAW D., (2010). *Application of uncertainty visualization methods to meteorological trajectories*. Earth Science Informatics, 3(1): pp 119–126.

BONNEAU M. et SOUCHIER B., (1979). *Pédologie, constituants et propriétés du sol*. Revue géographique des Pyrénées et du Sud-Ouest,51(3) : pp 376-377.

BOURCIER L., (2009). *Transport et dépôt de particules et radionucléides au puy de Dôme, France.* Thèse de doctorat. Université Blaise Pascal : 210 p.

BORCIER L., MASSON O., LAJ P., PICHON J-M., PAULAT P., FRENEY E. et SELLEGRI K., (2011). *Comparative trends and seasonal variation of Be-7, Pb-210 and Cs-137 at two altitude sites in the central part of France.* Journal of Environmental Radioactivity, 102(3): pp 294-301.

BRAMKI A., (2018). *Etude de la radioactivité naturelle et artificielle dans les fertilisants et le sol de l'Est algérien par spectrométrie gamma.* Thèse de doctorat, Université Frères Mentouri (Constantine 1): 146p.

CAILLET S., ARSPAGAU P., MONNA F. and DOMINIKI J., (2001). *Factors controlling ⁷Be and ²¹⁰Pb atmospheric deposition as revealed by sampling individual rain events in the region of Geneva, Switzerland.* Journal of Environmental Radioactivity, 53(2): pp 241- 256.

CARVALHO F-P., REIS M-C., OLIVEIRA J-M., MALTA M., SILVA L., (2011). *Radioactivity from Fukushima nuclear accident detected in Lisbon, Portugal.* Journal of Environmental Radioactivity, 114 (2012): pp 152-156.

CHAMAYOU H. et LEGROS J-P., (1989). *Les bases physiques, chimiques et mineralogiques de la science du sol.* Ed. Presses Universitaires de France, Agence de coopération culturelle et technique : 243p.

COHEN Y., (1997). *Centenaire Becquerel : Les grandes étapes de la découverte et de l'utilisation des radioéléments (1896-1996).* Revue d'histoire de la pharmacie, 85e année, n° 316, 1997 : pp 415-422. <https://doi.org/10.3406/pharm.1997.4895>.

CLEMENZA M., Fiorini E., Previtali E. et Sala E., (2011). *Measurement of airborne ¹³¹I, ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs due to the Fukushima reactor incident in Milan (Italy).* Journal of Environmental Radioactivity 2011, 114 (2012) : pp 113-118.

COURTINE F., (2007). *Etalonnage d'un spectromètre gamma en vue de la mesure de la radioactivité naturelle.* Mesures expérimentales et modélisation par techniques de Monte-Carlo. Thèse de doctorat. Université Blaise Pascal (Clermont-Ferrand II). France: 211p.

DELACROIX D., GUERRE J-P. et LEBLANC P., (2006). *Guide pratique Radionucléides & Radioprotection.* 261p.

DIDIER C., (2012). *Impact environnemental d'un accident nucléaire : comparaison entre Tchernobyl et Fukushima,* conférence à l'occasion de la journée Portes ouvertes organisée par

l'IRSN sur son site de Fontenay-aux-Roses dans le cadre des journées du patrimoine, 15 septembre 2012.

DRAXLER R., STUNDER B., ROLPH G., STEIN A. ET TAYLOR A., (2013). *Hysplit4 user Guide*, http://www.arl.noaa.gov/documents/reports/hysplit_user_guide.pdf.

DRAXLER R., ROLPH R. ET G., (2018). *HYSPLIT-Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory Model*. Silver Spring. <http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>.

DUENAS C., FERNANDEZ M-C., CANETE S., PERES M., (2009). *^7Be to ^{210}Pb concentration ratio in ground level air in Málaga (36.7°N, 4.5°W)*. Atmospheric Research, 92(1): pp 49-57.

DUMAT C. et STAUNTON S., (1995). *Influence of humic substances on the capacity of clays to immobilise pollutants: the case of radiocaesium*. Clays and clay materials sciences, Euroclay'95 (Leuven), August 20-24 : pp. 304-305.

FEELY H-Y., RICHARD J., LARSENC., SANDERSON G., (2006). *Factors that cause seasonal variations in Beryllium-7 concentrations in surface air*. Journal of Environmental Radioactivity, 9 (3), 1989 : pp 223-249.

GAMBINI D-J. et GRANIER R., (2007). *Manuel pratique de radioprotection. 3eme Ed*, Lavoisier, Paris: 666p.

GLENN F-K., (2000). *Radiation Detection and Measurement, 3ème Ed*, John Wiley & Sons: 829p.

HEGARTY J., DRAXLER R., STEIN A. et al. (2013). *Evaluation of lagrangian particle dispersion models with measurements from controlled tracer releases*, Journal of Applied Meteorology and Climatology, 52 (12): pp 2623–2637.

HENRI de Choudens, (2001). *Le risque nucléaire* : 250p.

Heyraud M., (1982). *Contribution à l'étude du polonium-210 et du plomb-210 dans les organismes marins et leur environnement*. PhD Université de Paris VI, Paris :144p.

IOANNIDOU A., PAPASTEFANOUC., (2006). *Precipitation scavenging of ^7Be and ^{137}Cs radionuclides in air*. Journal of Environmental Radioactivity, 85(1): pp121-36.

IRSN, (2004). *La radioécologie, IRSN*.

IRSN, (2006). *Bilan IRSN 2006 de la surveillance de la radioactivité de l'environnement en France métropolitaine : des niveaux de radioactivité faibles, dans la continuité des années antérieures.*

IRSN, (2009). *Portail de la surveillance de la radioactivité de l'environnement : la surveillance des aérosols : 10p.*

IRSN, (2011). *Synthèse actualisés des connaissances relatives à l'impact sur le milieu marin des rejets radioactifs du site nucléaire accidenté de Fukushima.* Note d'information : 16p. on

IRSN, (2013). *Sûreté et radioprotection du parc électronucléaire.*

JAIDAN D-N., (2018). *Etude des processus d'import et d'export de la pollution gazeuse et particulaire au-dessus du Bassin Méditerranéen dans le cadre du projet ChArMEx.* Thèse de doctorat. Université Toulouse 3 Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier) : 274p.

JANUSZ B., Ludwika K., Urszula M., Andrzej K., (2004). *Elemental concentrations in tropospheric and lower stratospheric air in a Northeastern region of Poland.* Atmospheric Environment, 38 (13): pp1989-1996.

JUNGCK T., MATTIAS H-A., JEAN-Louis A. et FROIDEVEAUX P., (2009). *Determination of radionuclide levels in rainwater using ion exchange resin and g-spectrometry.* Journal of Environmental Radioactivity, 100(4) April 2009: pp361-365. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2009.01.006>.

JAWOROWSKI Z., KOWNACK L., BYSIEK M., (1980). *Global distribution and sources of uranium, radium-226, and lead-210.* Conference on natural radiation environment III: pp 383-404.

KRITIDIS P., FLOROU H., ELEFThERIADIS K., EVANGELIOU N., GINI M., SOTIROPOULOU M., DIAPOULI E., VRATOLIS S.,(2011). *Radioactive pollution in Athens, Greece due to the Fukushima nuclear accident.* Journal of Environmental Radioactivity, 114 (2012): pp 100-104.

LAL D. et PETERS B., (1962). *COSMIC RAY PRODUCED ISOTOPES AND THEIR APPLICATION TO PROBLEMS IN GEOPHYSICS.* Progr. Elem. Particle Cosmic Ray Phys. Tata Inst. of Fundamental Research, Bombay, 6(1).

LUJZNIEN G., BYCENKIEN S., POVINEC P-P. et GERA M. (2011). *Radionuclides from the Fukushima accident in the air over Lithuania: measurement and modelling approaches.* Journal of Environmental Radioactivity, 114 (2012): pp 71-80.

- LUTZ G., (2001).** *Semiconductor Radiation Detectors*. Springer, Berlin: 353p.
- MAALEM Ms., (1998).** *Rayonnements : exercices corrigés avec rappel de cours*. 1ère Ed, Tome 1, Algerie: 147p.
- MCNEARY D. et Baskaran M., (2003).** *Depositional characteristics of ^7Be and ^{210}Pb in southeastern Michigan*. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 108(7).
- NASRI M., (2010).** *Etude et exploitation d'un mini spectromètre germanium portable*. Mémoire d'Ingénieur en Sciences Appliquées et en Technologie à Université du 7 novembre à Carthage (Tunis) : 69p.
- OUICHAOUI S., (1992).** *Introduction A La Physique Nucléaire*, Tome 1 constitution de la matière et noyaux. Edition Office des publications universités (ALGER): 290 p.
- PAPASTEFANOU C., MANOLOPOULO M., STOULOS S., IOANNIDOU A., GERASPOULOS E., (2000).** *Coloured rain dust from Sahara desert in still radioactive*. *Journal of Environmental Radioactivity*, 55(2001): pp 109-112.
- PARKOLA O., (1989).** *Assessing environmental radioactivity: In international symposium contamination following a major nuclear accident*. Vienna.
- PEDRAZA J-M., (2013).** World major nuclear accidents and their negative impact in the environment, human health and public opinion. *International Journal of Energy, Environment and Economics*, Vol 21: pp 1-23.
- PENIRO García F. et FERRO García M-A., (2012).** *Traces of fission products in southeast Spain after the Fukushima nuclear accident*. *Journal of Environmental Radioactivity*, 114 (2012): pp 146-151.
- PERROT F., HUBRET Ph., MARQUET Ch., PRAVIKOFF M-S., BOURQUIN P., CHIRON H., GUERNION Y. et NACHAB A., (2012).** *Evidence of ^{131}I and $^{134},^{137}\text{Cs}$ activities in Bordeaux, France due to the Fukushima nuclear accident*, *Journal of Environmental Radioactivity*, 114 (2012): pp 61-65
- POVINEC P-P., HIROSE K., et AOYAMA M., (2013).** *Fukushima accident : radioactivity impact on the environment*. 1ère Edition, Newnes: 400p.
- PHAM M-K., POVINEC P-P., LEE S-H. et OREGION B., (2002).** *Transport atmosphérique de particules de l'Afrique du Nord à Monaco*. *Journées de spectrométrie gamma et X- Saclay, 15-17 octobre 2002*, 2(123).

PHAM M-K., LA ROSA J-J., LEE S-H., OREGIONI B., ET POVINEC P-P., (2005). *Disposition of Saharan Dust in Monaco Rain 2001-2002: Radionuclides and element composition.* PhysicaScripta, 118: pp 14-17.

PHAM M-K., BETTI M, NIES H. et POVINEC P-P., (2011). *Temporal changes of ^{7}Be , ^{137}Cs and ^{210}Pb activity concentrations in surface air at Monaco and their correlation with meteorological parameters.* Journal of Environmental Radioactivity, 102(11) : pp 1045-1054.

PHAM M-K., ERIKSSON M., LEVY I., NIES H., OSVATH I. et BETTI M., (2012). *Detection of Fukushima Daiichi nuclear power plant accident radioactive traces in Monaco.* Journal of Environmental Radioactivity, 114 (2012): pp 131-137.

PHARABOD O. et SHAPIRA J-P., (1981). *Les Jeux de l'atome et du hasard: Les grands accidents nucléaires de Windscale et Tchernobyl.* Ed, Calmann-Levy: 252p.

PICAT D., CALMAT D., LOUVAT F., VRAY N., LEMAITRE G., LINDEN P., BARBEY G., PIGREE T., BOURCER F., LEVY S., Le BAR Y., BARON D., DELACROIX E., PANAIVA T., De Bruyene J-Y., Herve P., BEGUINEL N., CABANNE A., De PAEPE C., SANTUCCI T., PROT J-L. et MATRAY J-L., (2002). *Radioactivité d'origine naturelle dans l'environnement en France: niveaux non perturbés par l'homme Ph.Radioprotection.* 37 (3) : pp 283 -327. <https://doi.org/10.1051/radiopro:2002008>.

PIRARD B., (2006). *Etude et validation d'un spectromètre gamma pour la mesure de la composition chimique des surfaces planétaires.* PhD thesis, Université de Toulouse III (Paul Sabatier) : 204p.

PIGA D., (2010). *Processus engagés dans la rémanence au niveau du compartiment atmosphérique des radionucléides artificiels antérieurement déposés.* Thèse de Doctorat. Université du Sud Toulon Var: 249 p.

ROBBINS J-A., EDGINGTON D-N. et KEMP A-L., (1978). *Comparative ^{210}Pb , ^{137}Cs , and pollen geochronologies of sediments from Lakes Ontario and Erie.* Quaternary Research, 10(2): pp 256-278. [https://doi.org/10.1016/0033-5894\(78\)90105-9](https://doi.org/10.1016/0033-5894(78)90105-9)

ROBEAU D., DABURON F., et METIVIER H., (2000). *Le Césium de l'environnement à l'homme.* Ed. EDP Sciences : 294p.

ROLPH G., STEIN A. et STUNDER B., (2017). *Real-time Environmental Applications and Display System: READY.* Environmental Modelling & Software, 95 (2017): pp 210-228.

ROMAIN C., (2010). *Spectrométrie gamma haute résolution et hauts taux de comptage sur primaire de réacteur de type génération 4 au sodium liquide*, Thèse de doctorat.

SIDIQQUE N., et SLOAN J., (2012). HYSPLIT4: *a useful tool in performing air mass analysis*. Journal of the Chemical Society of Pakistan, 34(2): pp 376–390.

TAKAYUKI T., KENJI Y., KOH H. et SHIZUO T., (1996). *Seasonal variations of residence time and upper atmospheric contribution of aerosols studied with Pb-210, Bi-210, Po-210 and Be-7*. Journal Tellus B: Chemical and Physical Meteorology, 48 (5): pp 690-702.

TAEIB ERRAHMANI Dj., (2013). *Fixation des dépôts de la radioactivité dans les compartiments de l'environnement, air, sol et milieu marin au niveau de la région d'Alger*. Mémoire de magister, ENSSMAL : 88 p.

TAEIB ERRAHMANI Dj. et NOUREDDINE A., (2016). *Seasonal variation of radioactivity in aerosols at Algeriers station, Algeria*. New challenges with new analytical technologie, 21-25 septembre 2016, Thessaloniki (Grec): pp 79-82.

TAIEB ERRAHMANI Dj., (2020). *Transfert et dépôt de la radioactivité des aérosols et les eaux de pluies vers le sol et le milieu marin : application au Nord de l'Algérie* .Thèse de Doctorat, Sciences en Environnement marin : 246 p.

TAEIB ERRAHMANI Dj. et HAMMADI A., (2020). *Surveillance radiologique de l'environnement : Incendies en Ukraine dans la zone d'exclusion autour de la centrale de Tchernobyl-Avril 2020*. Rapport interne : 13p.

TUREKIAN N-Y. et BENNINGER L-K., (1997). *Geochemistry of atmospheric radon and radon products*. Annual Review of Earth and Planetary Sciences, 5(1): pp 227-255.

UNSCEAR, (2014). *Levels and effects of radiation exposure due to the nuclear accident after the 2011 great east-Japan earthquake and tsunami*. UNSCEAR 2013 Report. Volume I Report to the general assembly scientific annex A. New York (Etats Unies): 324p.

VALLES I., CAMACHO A., ORTEGA X., SERRANO I., BLAZQUEZ S. et PEREZ S., (2009). *Natural and anthropogenic radionuclides in airborne particulate samples collected in Barcelona (Spain)*. Journal of Environmental Radioactivity, 100(2) : pp 102-107.

VALERIE T-M, (2014). *Spectrométrie de fluorescence X, Circulation et provenance des matériaux dans les sociétés anciennes.* Ed. des archives contemporaines, Collection Sciences Archéologiques : 7p.

VICTOR O., GEORGE O. et ONYANGO A., (2014). *An investigation of the transport and dispersion of atmospheric pollutants over Nairobi City.* Journal of Environmental and Agricultural Sciences, 1(10): pp 2313-8629.

VITALI L., RIGHINI G., PIERSANTI A., CREMONA G., PACE G., et CIANCARELLA L., (2016). *M-TraCE: a new tool for high-resolution computation and statistical elaboration of backward trajectories on the Italian domain.* Meteorology and Atmospheric Physics, 129(7): pp 629–643.

Annexes

Tableau i : *Bruit de Fond des différents radionucléides dans les différentes matrices.*

radionucléides	K-40	Pb-210	Th-234	Pb-212	Be-7	Tl-208	Bi-214	Cs-137	Pb-214	Ac-228
BF(Filtre)	681±4,60	155±45,46	374±19,07	680±9,53	0	269±14,34	463±8,95	0	409±12,7	100±27,44
BF(eau)	176±10,93	0	260±16,59	351±11,55	0	0	177±15,47	0	250±13,40	0
BF(particule)	927±3,72	86±78,25	624±11,05	734±9,05	0	274±14,24	416±10,25	0	406±13,07	213±14,24

Tableau ii : Calcul d'efficacité des différents radionucléides de détecteur n° 3.

énergie(KeV)	Intensité(%)	Intensité	Activité (Bq)	temps de comptage(s)	N±DN	$\xi \pm D\xi$
121,7817	28,41	0,2841	148,612256	17784,41	79588±0,37	0,106±0,0053
244,7	7,55	0,0755	148,612256	17784,41	7813±1,39	0,0392±0,002
344,28	26,59	0,2659	148,612256	17784,41	23253±0,69	0,0331±0,0017
411,126	2,238	0,02238	148,612256	17784,41	1152±5,19	0,0195±0,0009
443,965	2,8	0,028	148,612256	17784,41	1452±4,12	0,0196±0,001
778,9045	12,97	0,1297	148,612256	17784,41	3733±2	0,0109±0,0005
867,38	4,243	0,04243	148,612256	17784,41	849±6,08	0,0076±0,0004
964,097	14,5	0,145	148,612256	17784,41	2571±2,34	0,0067±0,0003
1085,837	10,13	0,1013	148,612256	17784,41	1813±2,91	0,0068±0,0003
1112,076	13,41	0,1341	148,612256	17784,41	2205±2,47	0,0062±0,0003
1408,013	20,85	0,2085	148,612256	17784,41	2475±2,05	0,0045±0,0002

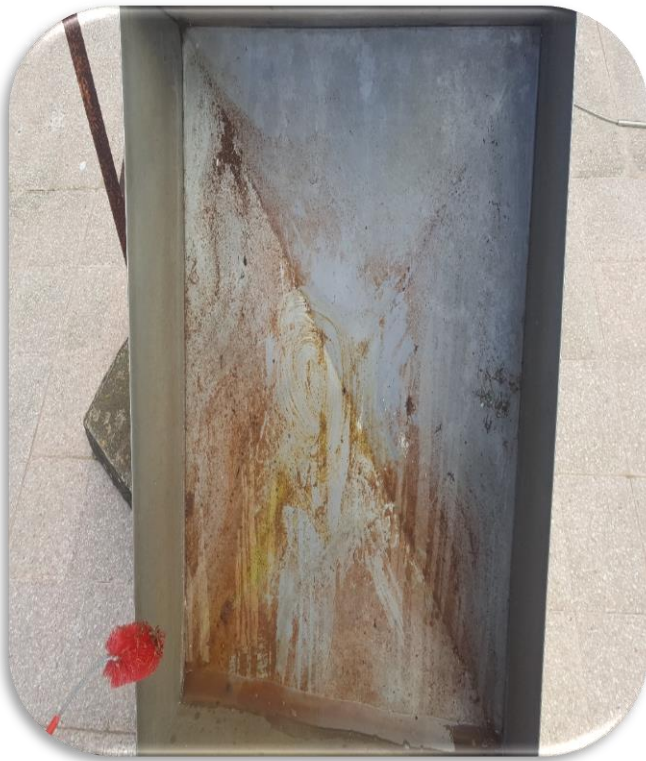


Figure i: *Préleveur d'aérosols.*

Figure ii : *Récupération d'échantillon de particules.*



Figure iii : *Echantillon d'aérosol.*



Figure iv : *Evaporation d'eau de pluie par une plaque chauffante.*



Figure v : *L'échantillon de particules placé dans le détecteur.*



Figure vi : La chaîne de spectrométrie gamma.

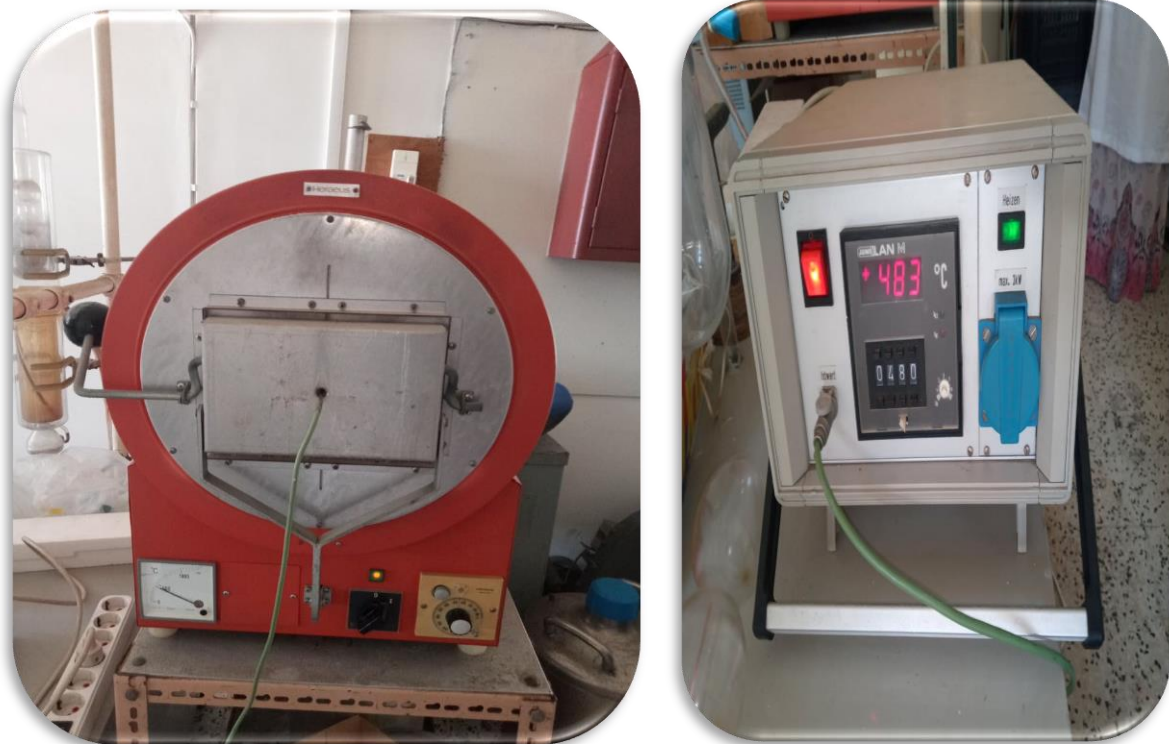


Figure vii : four à moufle.



Figure viii : capsule.



Figure ix : balance électrique



Figure x : Chambre d'EDXRF.



Figure xi: Graphique linéaire à rayons X.

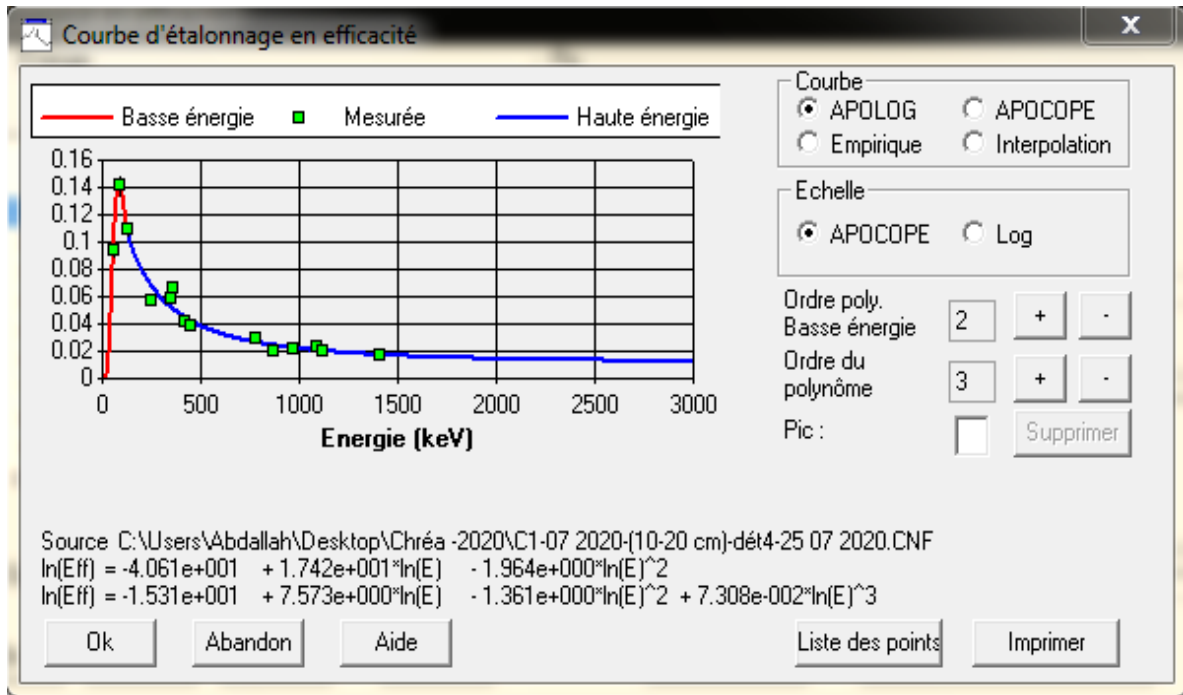


Figure xii : Courbe d'efficacit  d'un standard de particules (6g)

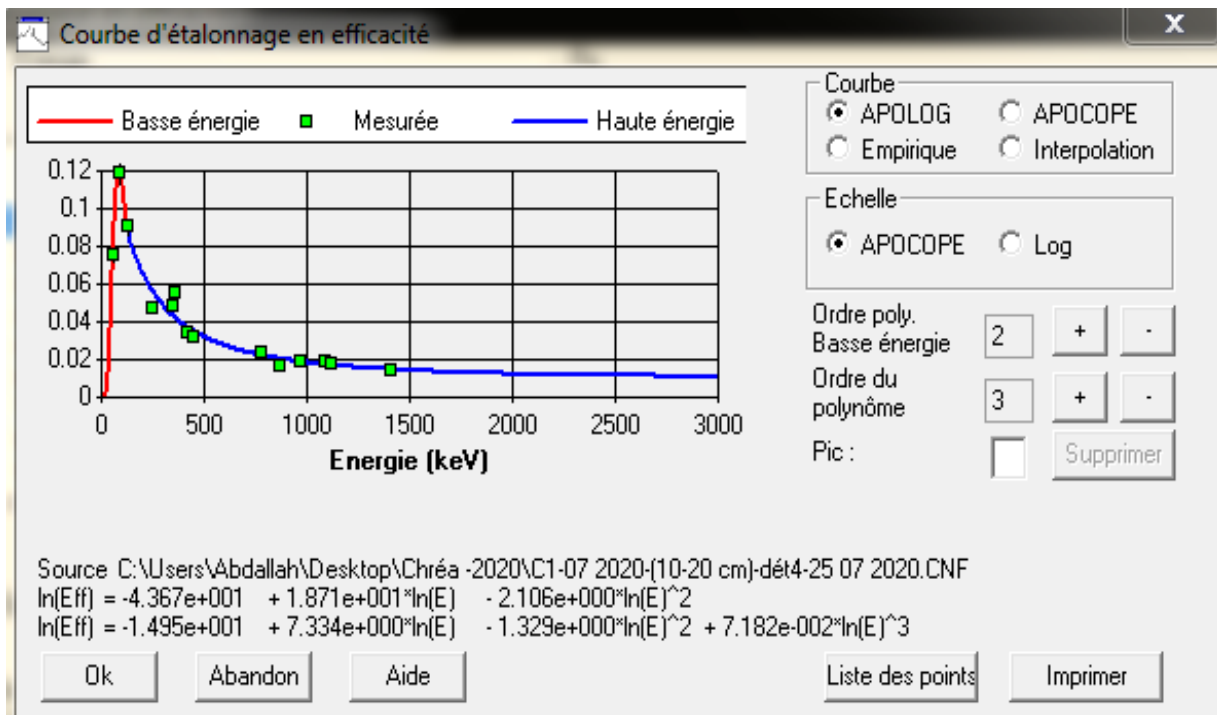


Figure xiii : Courbe d'efficacit  d'un standard de particules (9g)

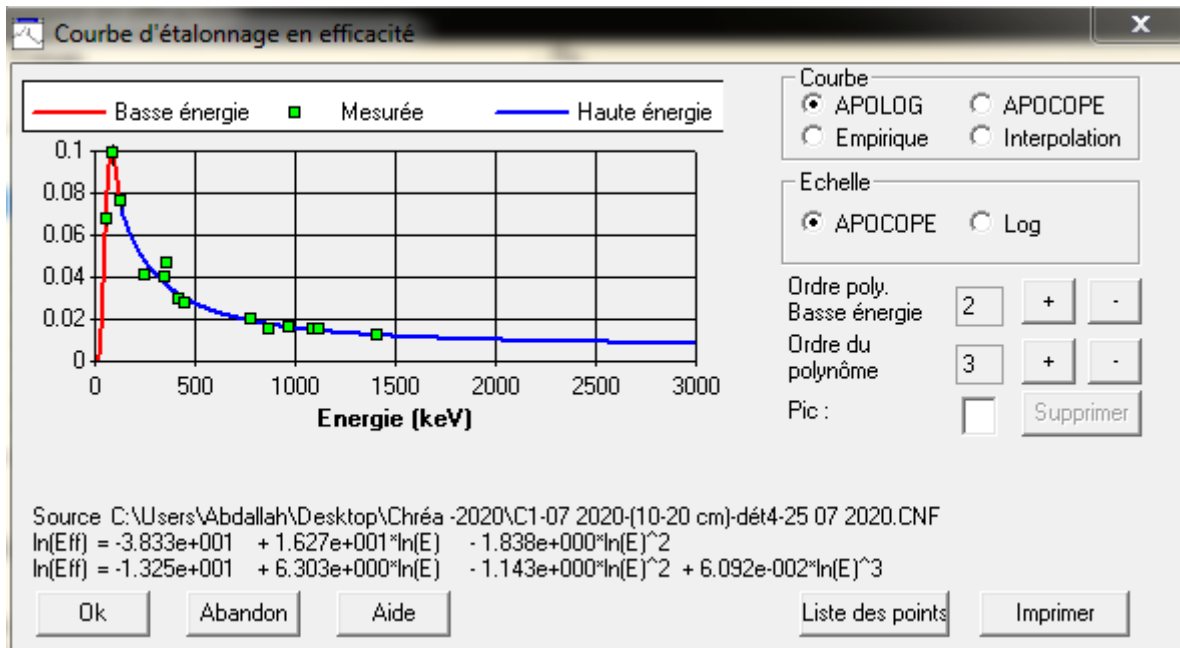


Figure xiv : Courbe d'efficacit  d'un standard de particule (12g).

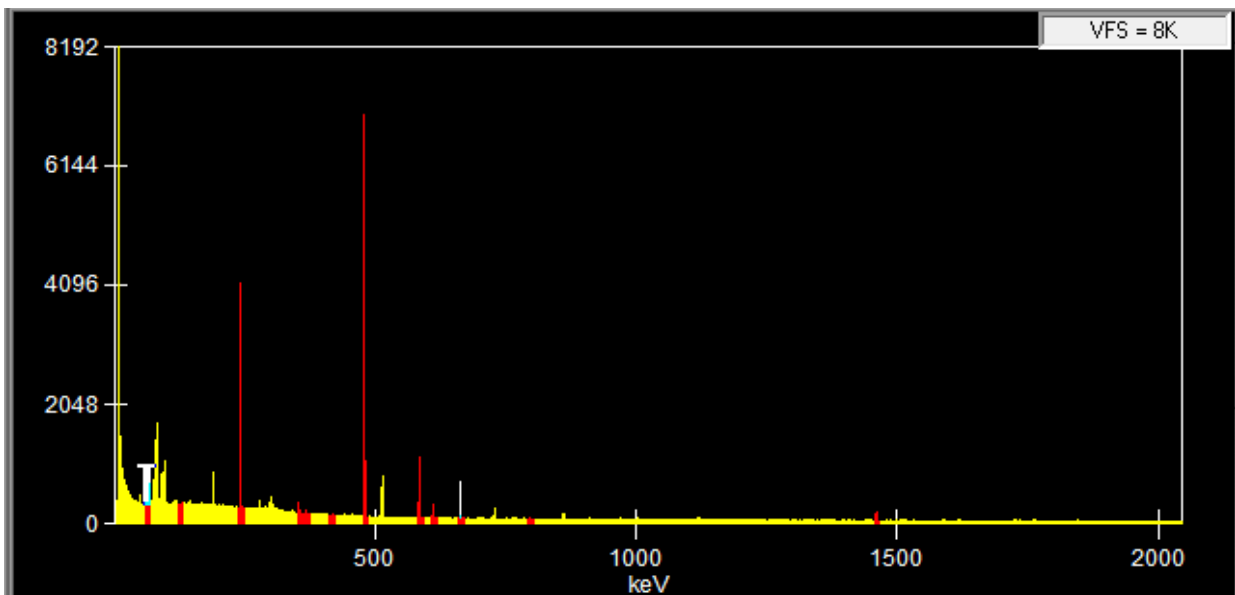


Figure xv: Spectre de raie d' nergie pour l' chantillon d'a rosols collect  lors de l'accident de Fukushima.

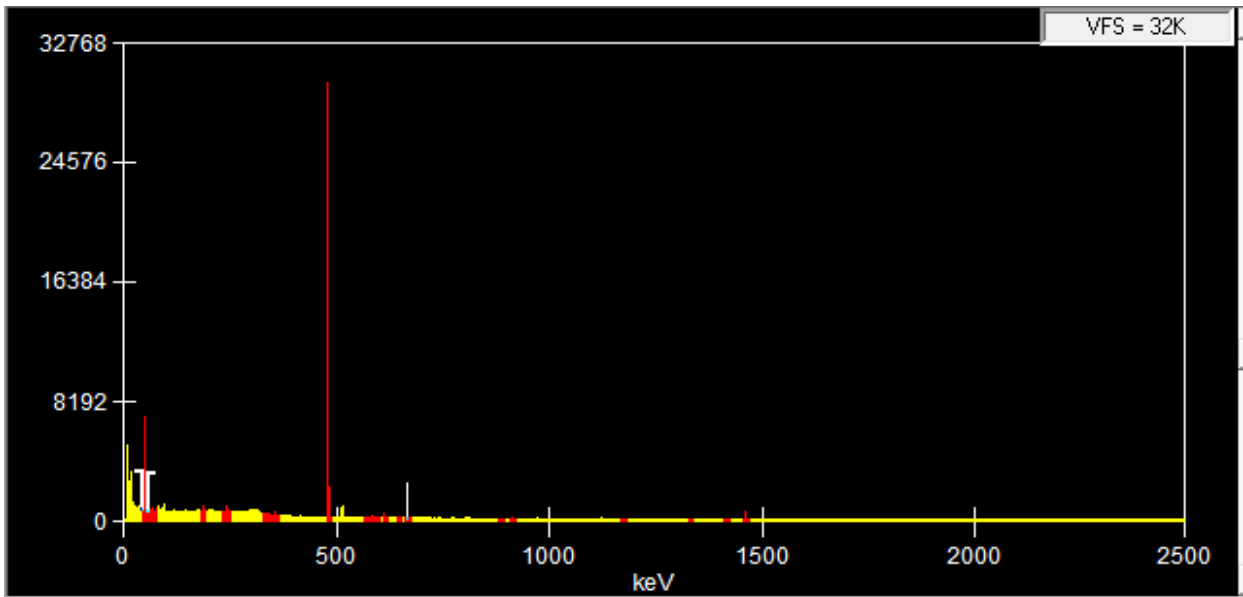


Figure xvi : Spectre de raie d'énergie pour l'échantillon d'aérosols.

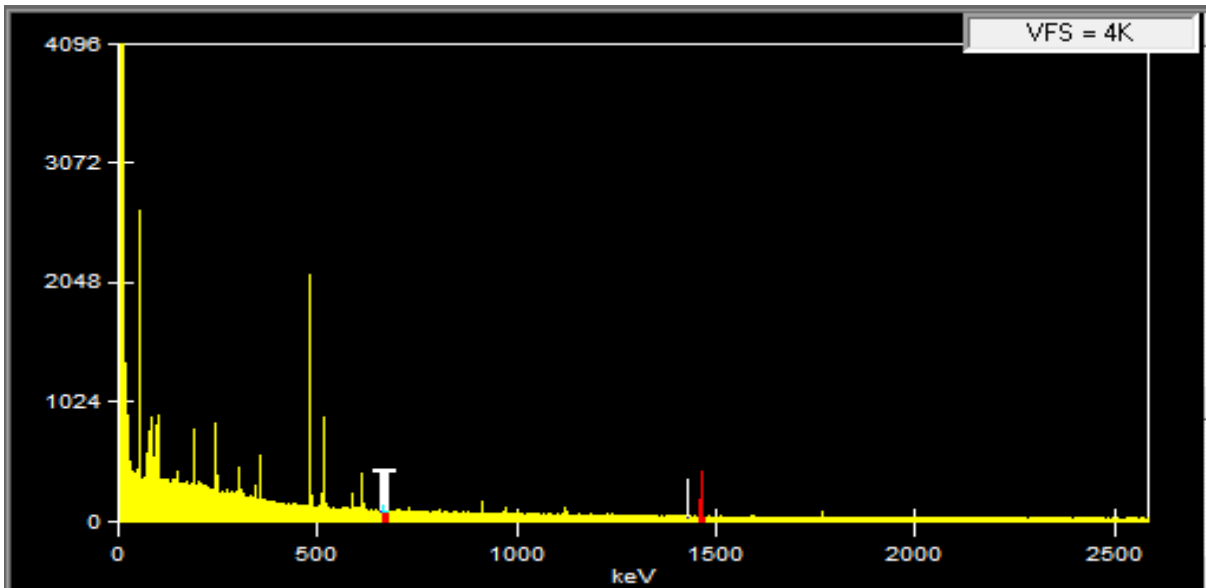


Figure xvii : Spectre de raie d'énergie pour l'échantillon de particules.

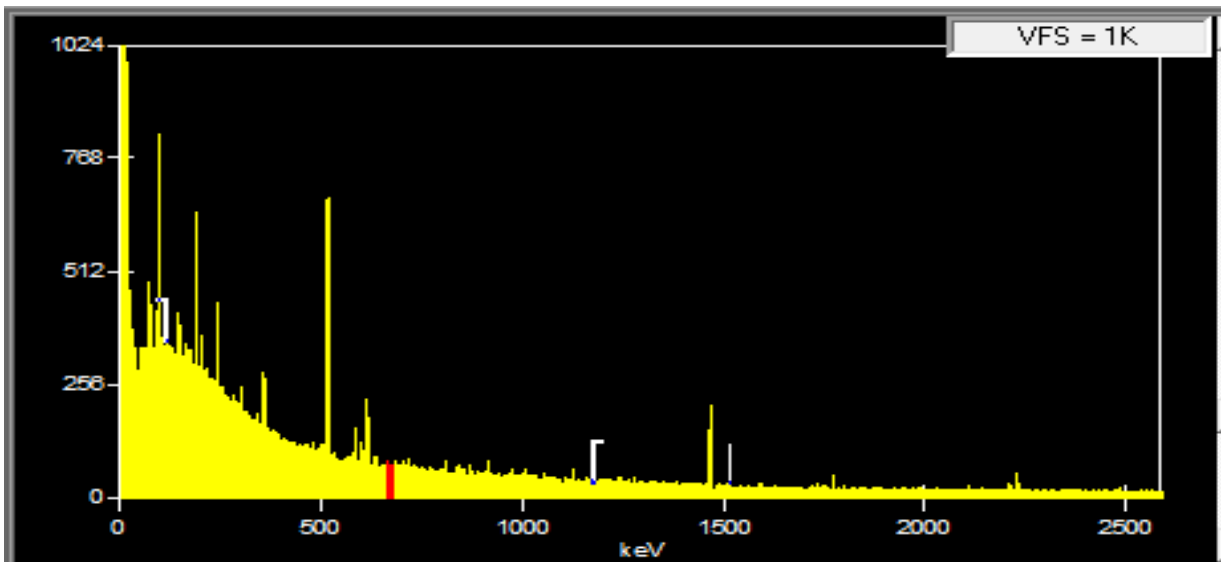


Figure xviii : Spectre de raie d'énergie pour l'échantillon de d'eau de pluie

Résumé

L'étude de la radioactivité dans l'atmosphère a une importance cruciale pour la surveillance radiologique de l'environnement et aussi pour l'évaluation de l'impact potentiel du transfert de cette radioactivité sur les milieux terrestres et marins.

L'objectif de ce travail consiste d'une part à une surveillance radiologique courte de l'atmosphère (aérosols, eaux de pluie et particules) du site d'Alger durant le premier trimestre de l'année 2020 et d'autre part, à tracer le parcours des masses d'air qui ont véhiculé la radioactivité artificielle durant l'accident de Fukushima en Mars 2011 en utilisant le code HYSPLIT 4.

Les échantillons de l'atmosphère ont été traités et analysés par spectrométrie gamma. Des analyses complémentaires ont été effectuées pour les particules : matière organique et composition chimique par EDXRF.

Les résultats obtenus montrent clairement la présence des radionucléides naturels (^7Be , ^{40}K , descendants de ^{238}U et ^{232}Th) dans les aérosols et les eaux de pluie. Outre la radioactivité naturelle, le ^{137}Cs a été détecté dans les particules avec une activité moyenne de $11,25 \pm 1,5 \text{ mBq/g}$.

Les rétro-trajectoires moyennes déterminées par le HYSPLIT 4 ont montré les parcours des masses d'air de Fukushima en traversant la Péninsule Ibérique et arrivant au site d'Alger.

Mots clés : radioactivité atmosphérique, surveillance radiologique, spectrométrie gamma HYSPLIT 4, accident de Fukushima.

Abstract

The study of radioactivity in the atmosphere is of crucial importance for the radiological monitoring of the environment and also for the evaluation of the potential impact of the transfer of this radioactivity on the terrestrial and marine environments.

The objective of this work consists on the one hand in a short radiological monitoring of the atmosphere (aerosols, rainwater and particles) of the Algiers site during the first quarter of the year 2020 , and on the other hand in tracing the path of the air masses that carried the artificial radioactivity during the Fukushima accident in March 2011 using the HYSPLIT 4 code.

The samples of the atmosphere were treated and analyzed by gamma spectrometry. Additional analyses were carried out for particles such as organic matter and chemical composition by EDXRF.

The results obtained clearly show the presence of natural radionuclides (^7Be , ^{40}K , descendants of ^{238}U and ^{232}Th) in aerosols and rainwaters. In addition to the natural radioactivity, ^{137}Cs was detected in particles with an average activity of $11.25 \pm 1.5 \text{ mBq/g}$.

The retro trajectories cluster determined by HYSPLIT 4 showed the paths of the air masses from Fukushima through the Iberian Peninsula to the Algiers site.

Key words: atmospheric radioactivity, radiological monitoring, gamma spectrometry
HYSPLIT 4, Fukushima accident.

ملخص

تعتبر دراسة النشاط الإشعاعي في الغلاف الجوي ذات أهمية حاسمة للرصد الإشعاعي للبيئة وأيضًا لتقييم التأثير المحتمل لنقل هذا النشاط الإشعاعي على البيئات الأرضية والبحرية.

يتمثل الهدف من هذا العمل من جهة في رصد إشعاعي قصير للغلاف الجوي (الهباء الجوي ومياه الأمطار والجسيمات) لموقع الجزائر العاصمة خلال الربع الأول من عام 2020 ومن جهة أخرى في تتبع مسار الكتل الهوائية، التي حملت النشاط الإشعاعي الاصطناعي أثناء حادث فوكوشيما في مارس 2011 باستخدام برمجة HYSPLIT 4.

تمت معالجة وتحليل عينات الغلاف الجوي بواسطة مقياس طيف جاما. تم إجراء تحليلات إضافية للجسيمات: المواد العضوية والتركييب الكيميائي بواسطة EDXRF.

تظهر النتائج التي تم الحصول عليها بوضوح وجود النويات المشعة الطبيعية (^{40}K , ^7Be , أحفاد ^{238}U و ^{232}Th) في الهباء الجوي ومياه الأمطار. بالإضافة إلى النشاط الإشعاعي الطبيعي، تم اكتشاف ^{137}Cs في جزيئات ذات نشاط متوسط يبلغ 11.25 ± 1.5 mBq/g.

أظهر متوسط المسارات الرجعية التي حددها HYSPLIT 4، مسارات الكتل الهوائية من فوكوشيما عبر شبه الجزيرة الأيبيرية إلى موقع الجزائر العاصمة.

الكلمات المفتاحية: النشاط الإشعاعي الجوي، المراقبة الإشعاعية، مقياس طيف جاما، HYSPLIT4، حادث فوكوشيما.