

N° d'ordre : 11/2016-M/GP

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique
Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene

Faculté de Génie Mécanique et de Génie des Procédés



MEMOIRE

Présenté pour l'obtention du **diplôme** de **MAGISTER**

En : GENIE DES PROCEDES

Spécialité : Génie des Procédés Industriels

Par : M^{lle} Naima AIT KACI

Sujet

**RADIOACTIVITE NATURELLE DANS LES RESIDUS INDUSTRIELS:
TRAITEMENT ET IMPACT**

Soutenu publiquement, le 29/09/2016, devant le jury composé de :

M ^{me} Leila BOUMEHDI TOUMI	Professeur (USTHB)	Présidente
M ^{me} Zineb HAMMOUDI SALEM	Professeur (USTHB)	Directrice de Mémoire
M ^{me} Rachida CHEMINI	MCA (USTHB)	Examinatrice
M ^{me} Hynda YAZID	MCA (USTHB)	Examinatrice
M. Abdelwahab BADREDDINE	Chercheur Confirmé (CRNA)	Invité
M. Hacène SAIBI	Chercheur Assistant (CRNA)	Invité

Remerciements

Tout d'abord, je tiens à exprimer toute ma gratitude à ma promotrice Pr. Zineb SALEM, membre du Laboratoire des Sciences du Génie des Procédés Industriels de l'Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene (U.S.T.H.B.), qui a bien voulu accepter de suivre ce travail.

Je tiens à remercier profondément toutes les personnes travaillant au niveau du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (C.R.N.A.), en particulier les membres du laboratoire de traitement de déchets radioactifs de la Division de l'Environnement, Sureté et Déchets Radioactifs (D.E.S.D.R.) qui ont accepté de m'accorder de leur précieux temps pour alimenter ma soif de connaissance et pour m'avoir permis de réaliser les travaux de recherche de cette étude.

Un grand merci à M. Hacène SAIBI, Chercheur Assistant au CRNA, qui m'a toujours épaulée durant mon stage, qui m'a permis de réaliser les travaux au sein de son laboratoire et qui a accepté de faire partie du jury d'évaluation de ce travail.

Je ne peux omettre de remercier M^{lle} Farida MESSILI et M. Abderrezak NECHAF Chercheurs au C.R.N.A., pour leurs dévouements et leurs disponibilités pour la réalisation de ce travail.

Je tiens également à remercier M. Abdelwahab BADREDDINE, Chercheur Confirmé au C.R.N.A., pour son aide, sa présence et son soutien indéfectibles et qui a accepté de faire partie du jury d'évaluation de ce travail.

Mes meilleurs remerciements à M^{me} Leila BOUMEHDI TOUMI, membre du Laboratoire des Sciences du Génie des Procédés Industriels de l'USTHB, qui a accepté de présider le jury d'évaluation.

Je remercie également M^{me} Rachida CHEMINI, membre du Laboratoire des Sciences du Génie des Procédés Industriels de l'USTHB, pour avoir accepté d'examiner ce travail.

Mes vifs remerciements à M^{me} Hynda YAZID, membre du Laboratoire de Génie de la Réaction de l'USTHB, pour avoir accepté de faire partie du jury en tant qu'examinatrice.

Durant la mise en œuvre des travaux, beaucoup d'obstacles ont été rencontrés. Heureusement que beaucoup de gentilles personnes étaient là pour me venir en aide et me permettre d'avancer, et sans lesquelles les travaux n'auraient pas pu aboutir. Que ces personnes, pour lesquelles j'ai beaucoup de respect, puissent trouver en ces lignes l'expression de toute ma reconnaissance.

Dédicace

Je tiens à dédier ce modeste travail à toutes les personnes chères à mon cœur

À mes chers parents

À mes adorables sœurs

À mes chers frères et leurs épouses respectives

À ma chère nièce et mes chers neveux

À tous mes chers amis.

Un grand merci à vous tous qui remplissez ma vie de joie.

LISTE DES FIGURES

Figure I.1 Rayonnements cosmiques (pluie de particules).....	16
Figure I.2 Chaîne de désintégration de l'U-238 et du Th-232.....	17
Figure I.3 Origines des NORM : points d'accumulation et de déposition dans les différentes installations d'exploitation du pétrole et du gaz.....	21
Figure I.4 Chaîne de désintégration de l'U-238 et du Th-232 avec le processus d'entraînement des différents radionucléides.....	22
Figure II.1 Chaîne de désintégration du Ra-226	44
Figure II.2 Courbe d'étalonnage en énergie.....	47
Figure II.3 Courbe d'étalonnage en efficacité.....	49
Figure III.1 Spectre gamma de la mesure de l'échantillon E001.....	54
Figure III.2. Spectre gamma de la mesure de l'échantillon E002.....	55
Figure III.3. Spectre gamma de la mesure de l'échantillon E003.....	55
Figure III.4 Répartition granulométrique de la radioactivité des échantillons NORM.....	56
Figure III.5 Activités spécifiques d'échantillons NORM de différentes installations du champ pétrolier.....	58
Figure III.6 Activité du Ra-226 lixivié en fonction de la concentration de HNO ₃ pour différents lavages successifs.....	63
Figure III.7 Activité du Ra-226 lixivié en fonction de la concentration de HCl pour différents lavages successifs.....	64
Figure III.8 Activité du Ra-226 lixivié en fonction du rapport solide/liquide de l'acide nitrique.....	65
Figure III.9 Activité du Ra-226 lixivié en fonction du volume de l'acide sulfurique.....	66
Figure III.10 Cinétique de lixiviation du Ra-226.....	67
Figure III.11 Taux d'extraction du Ra-226 par lixiviation acide.....	69
Figure III.12 Débit de dose autour du bac de stockage T-205.....	70
Figure III.13 Activité excrétée de différents organes pour l'ingestion d'1 Bq de Ra-226 ...	73
Figure III.14 Activité excrétée par différents organes après injection d'1 Bq par plaie.....	74

LISTE DES TABLEAUX

Tableau I.1. Caractéristiques radioactives des NORM rencontrés dans les exploitations du gaz et du pétrole.....	20
Tableau I.2. Principales formes des NORM dans les installations pétrolières et gazières ..	24
Tableau I.3. Concentrations des NORM issus de l'industrie du gaz et du pétrole.....	26
Tableau I.4 Débits de dose gamma autour de quelques installations pétrolières.....	27
Tableau I.5 Méthodes de décontamination des NORM.....	30
Tableau II.1 Caractéristiques de la source mixte.....	41
Tableau II.2 Facteur t pour différentes limites de confiance du test de Student.....	43
Tableau II.3 Temps et statistique de comptage des mesures par spectrométrie gamma.....	45
Tableau II.4 Calculs obtenus par l'emploi d'ANOVA.....	45
Tableau II.5 Mesures d'activité spécifique pour le test ANOVA.....	46
Tableau II.6 Test d'homogénéisation des échantillons NORM par analyse de la variance.....	47
Tableau II.7 Caractéristiques des produits chimiques utilisés dans les deux procédures de lixiviations.....	48
Tableau II.8 Traitement séquentiel des déchets NORM.....	50
Tableau III.1 Résultats de l'analyse par fluorescence RX des échantillons bruts et traités..	54
Tableau III.2 Dépouillement des spectres de spectrométrie gamma.....	55
Tableau III.3 Activités spécifiques des échantillons NORM.....	59
Tableau III.4 Taux de lixiviation du traitement séquentiel de l'échantillon E003.....	60
Tableau III.5 Comparaison des taux de lixiviation du traitement séquentiel.....	61
Tableau III.6 Activité du Ra-226 lixivié avec un ou trois lavages d'acides concentrés.....	63
Tableau III.7 Comparaison des taux de lixiviations pour différentes procédures.....	71
Tableau III.8 Débits de dose de l'industrie pétrolière.....	73
Tableau III.9 Débit de dose mesuré pour chaque intervenant au cours de l'opération de décontamination du back T-205.....	73

LISTE DES PHOTOS

Photo I.1 Accumulation de NORM à l'intérieur d'un pipeline.....	25
Photo I.2 Mesure du débit de dose au niveau d'un pipeline.....	28
Photo I.3 Opération d'extraction de boue d'un séparateur (Atomic Energy Commission of Syria).....	29
Photo I.4 Travailleurs en tenue de protection individuelle utilisant la HPWJ (Atomic Energy Commission of Syria).....	31
Photo II.1 Chaîne de spectrométrie gamma.....	36
Photo II.2 Préparation des standards solide et liquide.....	39
Photo II.3 Echantillons de boue NORM du champ pétrolier.....	44
Photo III.1 Dispositif expérimental de lixiviation.....	69

LISTE DES ABREVIATIONS

AIEA	<i>Agence Internationale de l'Énergie Atomique (institution spécialisée de l'ONU)</i>
ALARA	<i>As Low As Reasonably Achievable (« au niveau le plus bas qu'il est raisonnablement possible d'atteindre » : principe de radioprotection dit aussi « principe d'optimisation »)</i>
AIDE	<i>Activity and Internal Dose Estimates</i>
ANOVA	<i>analyze of variance</i>
A_s	<i>Activité spécifique en Becquerel par gramme (Bq/g)</i>
A_t	<i>Activité totale en Becquerel (Bq)</i>
Bq	<i>Becquerel (unité d'activité)</i>
BSS	<i>Basic Safety Standards (Normes de bases européennes)</i>
CRNA	<i>Centre de Recherche Nucléaire d'Alger</i>
FAO	<i>Food and Agriculture Organization of the united nations (organisation des Nations Unies pour l'alimentation et l'agriculture)</i>
FRX	<i>Fluorescence des Rayons X</i>
OMS	<i>Organisation Mondiale de la Santé</i>
NORM	<i>Naturally Occurring Radioactive Materials (matières premières naturellement radioactives)</i>
Sv	<i>Sievert (unité de dose équivalente et unité de dose efficace)</i>
TENORM (matières	<i>Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Materials</i> <i>premières dont la concentration en radionucléides a été accrue par un procédé industriel mais</i> <i>qui ne sont pas utilisées pour leurs propriétés fissiles, fusibles ou fertiles)</i>
IRSN	<i>Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire</i>
JO	<i>Journal Officiel</i>
mSv	<i>milliSievert (millième de Sievert)</i>
MeV	<i>Méga électron Volt</i>
ONU	<i>Organisation des Nations Unies</i>
SIEVERT	<i>unité de dose équivalente et unité de dose efficace (Sv)</i>
Am	<i>américium</i>
Cd	<i>cadmium</i>

Ce	<i>cérium</i>
Hg	<i>mercure</i>
Sn	<i>étain</i>
Sr	<i>strontium</i>
Y	<i>yttrium</i>
As	<i>arsenic</i>
U	<i>Uranium</i>
Th	<i>Thorium</i>
Ra	<i>Radium</i>
Rn	<i>Radon</i>
Pb	<i>Plomb</i>
Po	<i>Polonium</i>
Bi	<i>Bismuth</i>
Tl	<i>Thallium</i>
Ac	<i>Actinium</i>
Co	<i>Cobalt</i>
Cs	<i>Césium</i>
BaSO₄	<i>sulfate de barium</i>
SrSO₄	<i>sulfate de strontium</i>
CaCO₃	<i>carbonate calcium</i>
GNL	<i>Gaz Naturel Liquifié</i>
GOSP	<i>gas oil separation plant</i>
g	<i>gramme</i>
µSv/h	<i>micro sievert par heure</i>
mSv/an	<i>milli sievert par an</i>
h/an	<i>heures par an</i>
HPWJ	<i>High Pressure Water Jet</i>
MPa	<i>mégapascal</i>
keV	<i>kilo électron Volt</i>
GeHP	<i>Germanium hyper pur</i>

NaI(Tl)	<i>Iodure de sodium dopé au thalium</i>
ml	<i>milli litre</i>
T	<i>période radioactive</i>
ENSP	<i>Entreprise Nationale de Services au Puits</i>
kg	<i>kilo gramme</i>
g/mol	<i>gramme par mole</i>
mol/l	<i>mole par litre</i>
g/ml	<i>gramme par milli litre</i>
trs/min	<i>tours par minute</i>
M	<i>mole par litre</i>
pH	<i>potentiel hydrogène</i>
MgCl₂	<i>Chlorure de magnésium</i>
CH₃COONa	<i>Acétate de sodium</i>
NH₂OH.HCl	<i>Hydroxylamine hydrochloride</i>
CH₃COOH	<i>acide acétique</i>
HNO₃	<i>acide nitrique</i>
H₂O₂	<i>Peroxyde d'hydrogène</i>
NH₄NO₃	<i>nitrate d'ammonium</i>
H₂O	<i>eau distillée</i>
C	<i>carbone</i>
O	<i>oxygène</i>
Na	<i>sodium</i>
Mg	<i>magnésium</i>
Al	<i>aluminium</i>
Si	<i>silicium</i>
P	<i>phosphore</i>
S	<i>soufre</i>
Cl	<i>chlore</i>
K	<i>potassium</i>
Mn	<i>manganèse</i>

Fe	<i>fer</i>
Zn	<i>zinc</i>
HF	<i>acide fluorhydrique</i>
HCl	<i>acide chlorhydrique</i>
H₂SO₄	<i>acide sulfurique</i>
S/L	<i>rapport solide/liquide</i>
L	<i>taux de lixiviation</i>
HClO₄	<i>acide perchlorique</i>
t_c	<i>temps de contact</i>

SOMMAIRE

INTRODUCTION GENERALE	13
I. Synthèse bibliographique	15
Introduction	15
I.1. Radioactivité naturelle et radioactivité naturelle renforcée	15
I.1.1. Radioactivité naturelle	15
I.1.2. Radioactivité naturelle renforcée (NORM)	18
I.1.3. Origines et caractéristiques des NORM	20
I.2. Risques sanitaire des NORM	27
I.2.1. Exposition externe	27
I.2.2. Exposition interne	28
I.2.3. Procédures de décontaminations favorisant des risques sanitaire lié à l'exposition aux NORM	29
I.2.4. Mesures de radioprotection pour les NORM de l'industrie du pétrole et du gaz	32
Conclusion	34
II. Matériels et méthodes	35
Introduction	35
II.1. Mesures radiométriques par spectrométrie gamma du radium	35
II.1.1. Caractéristiques physico-chimique du radium	35
II.1.2. Mesure par spectrométrie gamma	36
II.1.3. Mesure de la concentration en activité du radium 226	41
II.2. Préparation des échantillons de déchets NORM	43
II.2.1. Echantillonnage et séchage des échantillons NORM	43
II.2.2. Broyage et homogénéisation des échantillons NORM	44
II.3. Caractérisation chimique des NORM	47
II.3.1. Fluorescence des Rayons X (FRX)	47
II.3.2. Principe de la FRX	47
II.4. Traitement chimique des NORM	48

II.4.1. Protocole du traitement séquentiel des NORM.....	48
II.4.2. Protocole du traitement par lixiviation acide des NORM.....	50
Conclusion.....	52
III. Résultats et discussions.....	53
Introduction.....	53
III.1. Analyses des échantillons NORM.....	53
III.1.1. Caractérisation chimique des NORM.....	53
III.1.2. Caractérisation radiologique des NORM.....	54
III.2. Traitement séquentiel.....	59
III.2.1 Taux de lixiviation du traitement séquentiel.....	59
III.3. Traitement par lixiviation acide.....	62
III.3.1. Optimisation des paramètres de lixiviation.....	62
III.3.2. Application des paramètres optimaux de la lixiviation acide aux déchets NORM.....	68
III.4. Impact radiologique des NORM.....	72
III.4.1. Débits de dose autour des installations d'un champ pétrolier.....	72
III.4.2. Simulation d'une contamination interne.....	74
Conclusion.....	77
CONCLUSION GENERALE.....	78
BIBLIOGRAPHIES.....	80
ANNEXE GLOSSAIRE DE SÛRETÉ DE L'AIEA	86

INTRODUCTION GENERALE

Les radionucléides naturels constituent l'essentiel de la radioactivité de l'environnement, on les retrouve partout et sont omniprésents dans l'air, dans le sol, dans l'eau ainsi que dans tous les organismes vivants (Y.S. CORDOLIANI, 2014). L'exposition à cette radioactivité qui existe depuis la création de l'univers, ne représente aucun danger, tant qu'elle reste dans son état naturel. Cependant, l'intervention humaine à travers certaines activités industrielles, telles que l'extraction minière et le forage et la production pétrolière où différents processus physico-chimiques sont mis en œuvre, peuvent conduire à l'augmentation des concentrations des radionucléides naturels, dans les résidus ou les produits finis et semi-finis de ces industries (radioactivité naturelle renforcée).

Cette radioactivité d'origine naturelle peut atteindre des niveaux de concentration qui pourraient avoir un impact non négligeable aussi bien sur l'homme que sur l'environnement. Les déchets présentant une radioactivité naturelle renforcée sont souvent désignés sous l'acronyme NORM (Naturally Occuring Radioactive Materials) (Agence Internationale de l'Energie Atomique AIEA (a), 2003).

En Algérie, le secteur pétrolier représente le plus gros générateur de déchets NORM, à cause de la grande exploitation des énergies fossiles sur laquelle repose l'économie Algérienne. Les déchets NORM de l'industrie pétrolière se présentent sous forme de dépôts solides de sulfates ou de carbonates, contenant principalement le radium (Ra-226) et ses descendants.

Actuellement, il n'existe pas encore de traitement de ces déchets, qui sont stockés depuis des années sur des aires d'entreposage. Mais, vues les quantités de plus en plus importantes, il devient nécessaire de trouver une solution de traitement, afin de réduire le volume et baisser le taux de radioactivité jusqu'à la limite d'exemption, et ce, afin de garantir la sécurité des travailleurs exposés à ce risque.

C'est dans cette problématique que s'inscrit la présente étude. Notre approche est structurée en deux grandes parties.

Dans la première partie ou chapitre I, nous présentons une synthèse bibliographique sur cette radioactivité naturelle renforcée présente dans l'industrie du pétrole ainsi que les risques d'exposition.

Dans la deuxième partie, nous développons l'étude expérimentale, articulée autour de deux chapitres :

Dans le chapitre II, nous donnons une description des matériels et méthodes utilisés lors de l'échantillonnage et le conditionnement des échantillons NORM, la caractérisation chimique par la fluorescence des rayons X, les mesures radiométriques par spectrométrie gamma, et les procédures de traitement des NORM.

Le chapitre III est consacré aux résultats obtenus lors:

- de la mesure de la radioactivité dans diverses installations au niveau de l'unité de production (Hassi Messaoud), de la caractérisation chimique et radiologique des échantillons prélevés et sur la distribution granulométrique de la radioactivité pour les échantillons ayant une activité dépassant la norme ;
- du traitement de ces déchets: deux procédés de traitement ont été appliqués ; un traitement séquentiel et une lixiviation acide. Une étude paramétrique a permis d'optimiser les paramètres de la lixiviation, à savoir : la concentration, le rapport solide liquide, le temps de contact, etc.

Toujours au niveau du chapitre III, nous avons entrepris l'estimation de l'impact que pourrait engendrer ce type de déchets NORM sur les travailleurs exposés. Ainsi, des mesures in situ du débit de dose autour des installations du champ pétrolier ont été effectuées, ce qui a permis d'avoir une première évaluation du risque d'exposition des travailleurs à proximité de ces installations.

Pour parachever cette étude, une simulation d'une contamination interne est traitée en utilisant le logiciel AIDE (Logiciel AIDE, 2009), qui permet de calculer l'activité incorporée et d'en estimer la dose due à une contamination interne.

Enfin, nous achevons cette étude par une conclusion générale englobant les principaux résultats obtenus, ainsi que quelques recommandations et perspectives.

I. Synthèse bibliographique

Introduction

Ce chapitre est une synthèse bibliographique sur la radioactivité naturelle et la radioactivité naturelle concentrée (NORM). Nous nous sommes focalisés sur les origines et les caractéristiques des déchets NORM de l'industrie pétrolière ainsi que les risques sanitaires qu'engendre ce genre de NORM et les mesures de radioprotection qui s'en suivent.

I.1. Radioactivité naturelle et radioactivité naturelle renforcée

Exposés de tout temps à la radioactivité naturelle, les hommes ne soupçonnaient d'ailleurs pas son existence jusqu'au siècle dernier. Ce n'est qu'à partir de 1896, avec la découverte des rayons uraniques par Henri Becquerel, que l'humanité a pris conscience de ces rayonnements et a cherché à en comprendre les multiples origines (CORDOLIANet al., 2014) .

La radioactivité est l'émission de rayonnement par des atomes fusionnant ou se désintégrant. Lorsqu'un noyau atomique instable, du fait qu'il soit trop léger ou trop lourd, se fond avec d'autres ou se scinde, il émet l'énergie équivalente à sa perte de masse sous trois formes :

α , alpha (noyaux d'hélium) ;

β , bêta (électrons) ;

γ , gamma (rayonnement électromagnétique).

Si la désintégration est spontanée, on parle de radioactivité naturelle. Si elle est provoquée par une réaction nucléaire, on parle de radioactivité artificielle ou induite.

La radioactivité est omniprésente dans l'univers et sur Terre, la fusion ou la désintégration d'atomes instables étant un phénomène courant de la matière.

I.1.1. Radioactivité naturelle

Les principales sources naturelles de radioactivité sont d'origine terrestre, cosmique et interne.

I.1.1.1. Le rayonnement cosmique

La Terre est en permanence soumise à un flux de particules primaires de haute énergie (c'est à dire animées d'une vitesse proche de celle de la lumière) en provenance de l'espace et du soleil, on appelle cela les rayons cosmiques. Parmi ces particules, on trouve des

protons, des noyaux d'hélium, mais également des rayons gamma qui eux sont très dangereux pour l'homme ; certaines particules viennent du soleil ou de d'autres étoiles, mais l'origine des plus rapides d'entre elles reste un mystère (Figure I.1).

Le rayonnement cosmique galactique est isotrope. Par conséquent, toute la surface de la terre y est exposée en permanence. Une partie de ce rayonnement est déviée par le champ magnétique transporté par le vent solaire. En effet, l'atmosphère du soleil laisse échapper en permanence un flux de particules qui remplit tout le milieu interplanétaire, que l'on appelle le vent solaire.

L'atmosphère n'absorbe qu'une partie de ces particules de haute énergie. En effet, l'exposition au rayonnement cosmique augmente rapidement avec l'altitude car la couche atmosphérique protectrice devient moins épaisse. Ce rayonnement cosmique entraîne la production en cascade de particules radioactives secondaires (voir tertiaires) à partir de noyaux plus lourds présents dans la haute atmosphère par un phénomène de spallation (Figure I.1). C'est à dire la fragmentation du noyau de ces éléments lourds à cause du choc qu'ils ont subis avec des particules de haute énergie. Ce phénomène est à l'origine, entre autre, de la production de carbone 14 sur notre planète (CORDOLIANet al., 2014) .

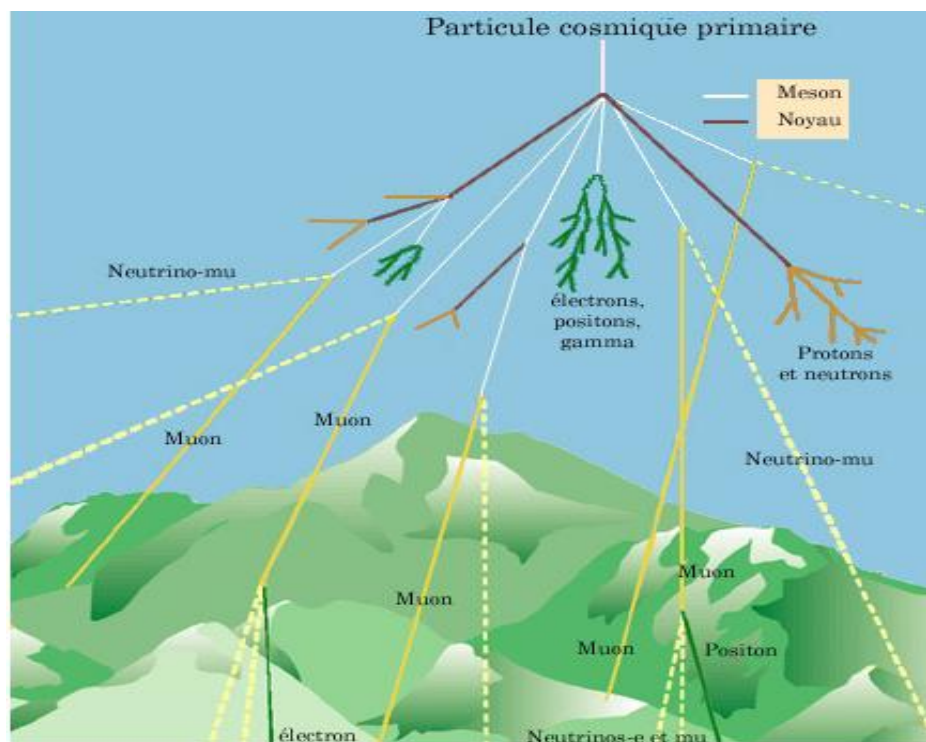


Figure 0.1 Rayonnements cosmiques (pluie de particules) (CORDOLIANet al., 2014) .

Après cela, seule une fraction des particules de ce rayonnement atteint le sol. L'exposition sur terre à ce rayonnement dépend donc de l'activité solaire, de la latitude et de l'altitude à laquelle on se trouve.

1.1.1.2. Le rayonnement tellurique

L'écorce terrestre contient des éléments radioactifs, comme le Thorium ou l'Uranium qui sont loin d'avoir disparus du fait de leur très longue période. Les roches contenant ces éléments ainsi que leurs descendants sont donc radioactives.

Les noyaux d'uranium et de thorium qui se désintègrent se transforment par « filiation » en une succession d'éléments radioactifs. On retrouve ces descendants, en équilibre radioactif (c'est-à-dire que pour chacun de ces descendants il s'en forme autant qu'il s'en désintègre), au sein des minerais d'uranium et de thorium. Les plus célèbres sont le radium, et le polonium, identifiés par Pierre et Marie Curie (1898), et le radon (1900) en raison de sa part importante dans la radioactivité naturelle (CORDOLIANI et al., 2014) .. Finalement, au bout de milliards d'années, les noyaux d'uranium et de thorium deviennent des noyaux stables de plomb, après être passés par toute la série de leurs descendants (Figure I.2).

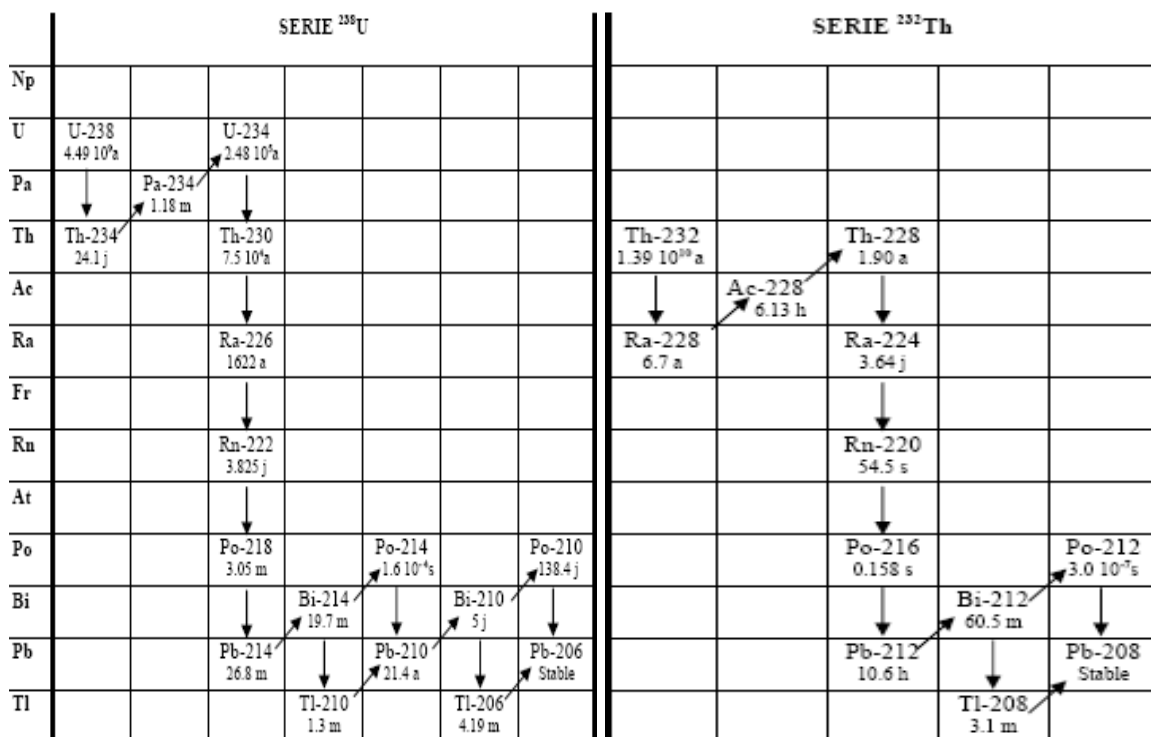


Figure 0.2 Chaîne de désintégration de l'U-238 et du Th-232 (ICRP (International Commission on Radiological Protection), 1983)

Les éléments primordiaux représentés par l'U-238 et Th-232, avec les atomes issus de leur désintégration sont responsables du rayonnement tellurique. Il s'agit ici de rayonnements gamma qui sont émis et qui varient en intensité en fonction des régions car, les types de sols ne sont pas les mêmes. Par exemple, les régions qui ont un sol riche en granite sont soumises à des rayonnements intenses, car cette roche contient plus d'éléments radioactifs que la moyenne.

1.1.1.3. La radioactivité présente dans le corps humain

Il existe un autre type de radioactivité naturelle : la radioactivité interne à notre corps. Elle provient notamment de notre alimentation : les éléments radioactifs contenus dans les roches vus précédemment se retrouvent à l'état de trace dans la végétation et l'eau. Ces éléments suivent la chaîne alimentaire et passent donc dans les aliments que nous consommons. Ainsi nous les retrouvons dans nos légumes, fruits et viandes. Toutefois, ces doses sont très minimes et on ne sait pas si elles ont un véritable effet négatif, c'est pourquoi des limitations sont apparues en vertu du principe de précaution.

Enfin, nous sommes nous mêmes radioactifs du fait de la présence de carbone 14 et du potassium 40 dans notre organisme (CORDOLIAN et al., 2014) .

1.1.2. Radioactivité naturelle renforcée (NORM)

Le bruit de fond radioactif naturel a toujours existé et, en moyenne, l'exposition totale subie par l'homme a sans doute peu varié au cours des siècles. Toutefois, des changements dans les modes de vie ou l'introduction de nouvelles pratiques ont pu modifier quelque peu cette situation.

1.1.2.1. NORM dans l'industrie

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

-
- la combustion de charbon en centrales thermiques ;
 - le traitement des minerais d'étain, d'aluminium, de cuivre, de titane, de niobium, de bismuth et de thorium ;
 - la production de céramiques réfractaires ;
 - la production ou l'utilisation de composés comprenant du thorium ;
 - la production de zircon ;
 - la production d'engrais phosphatés et la fabrication d'acide phosphorique ;
 - le traitement du dioxyde de titane ;
 - le traitement des terres rares et la production de pigments en contenant ;
 - le traitement d'eau souterraine par filtration destinée à la production d'eau de consommation ;
 - les établissements thermaux ;
 - l'exploitation du pétrole et du gaz (Agence Internationale de l'Energie Atomique AIEA (c), 2012).

1.1.2.2. NORM dans l'industrie du pétrole

Les premiers rapports sur les NORM associée au pétrole et au gaz naturel sont apparus en 1904 (McLENNAN, 1904). En 1927, il est découvert que les eaux résiduelles d'un champ de pétrole en Russie contiennent plus de 250 Bq/L de radium 226. Connues depuis 1 siècle, ces concentrations n'ont pas fait l'objet d'attention particulière jusqu'en 1970 (BONNEMAINS, et al., 2005). Des rapports ultérieurs décrivent l'apparition du Ra-226 dans les réservoirs d'eau des champs de pétrole et de gaz (KOLB, et al., 1985), (BORN, 1936) et dans les années 1970 et 1980 plusieurs observations ont amené un regain d'intérêt (GESELL, 1975), (WALDRAM, 1988). Des teneurs importantes en radon dans le gaz naturel, des tartres radioactifs à très fortes teneurs dans des puits de pétrole terrestres en Allemagne et au Mississippi, des dépôts internes de plomb 210 dans des terminaux gaziers en Grande-Bretagne et d'autres tartres apparus dans les plates-formes off-shore en Mer du Nord ont alors préoccupé les exploitants, plus à cause des risques pour la sécurité (difficultés de fermeture de valves) et des réductions de production que par la prise en considération environnementale et sanitaire de la radioactivité (BONNEMAINS, et al., 2005). Les aspects radiologiques de ces phénomènes, les résultats de la surveillance et des analyses et l'élaboration de lignes directrices pour la sécurité de rayonnement sont maintenant largement rapporté (SHELL UK EXPLORATION AND PRODUCTION, 1990), (JONKERS, et al., 1997).

Il s'avère que les eaux de formation des réservoirs de pétrole et de gaz contiennent sous forme dissoute une certaine concentration en radium (Ra-226 et Ra-228) et ses produits de désintégration (Tableau I.1).

Tableau 0.1. Caractéristiques radioactives des NORM rencontrés dans les exploitations du gaz et du pétrole (KINSEY, 1997)

Radionucléide	Demi-vie	Mode de désintégration	Produit de désintégration
Ra-226	1600 ans	alpha	Rn-222 (gaz noble)
Rn-222	3.8235 jours	alpha	Descendants à vie très courte
Pb-210	22.30 ans	bêta	Po-210 (émetteur alpha)
Po-210	138.40 jours	alpha	Pb-206 (stable)
Ra-228	5.75 ans	bêta	Th-228
Th-228	1.9116 ans	alpha	Ra-224
Ra-224	3.66 jours	alpha	Descendants à vie très courte

Ces radionucléides sont entraînés à la surface lors du pompage du pétrole et les modifications de pression et température qui en résultent peuvent conduire à la formation de dépôts qui sont des précipités solides de sulfates ou de carbonates. La fraction de radium qui n'est pas précipitée sous forme de dépôt se retrouve dans les boues d'extraction.

Par ailleurs, le gaz radon (Rn-222) présent dans la formation sera entraîné à la surface avec la fraction gazeuse.

I.1.3. Origines et caractéristiques des NORM

Les éléments radioactifs tels que l'uranium et le thorium ont été incorporés dans la croûte de la terre lors de sa formation il y a des milliards d'années. Ils existent à faibles concentrations (parties par million - ppm) dans les formations rocheuses. La décroissance de ces éléments radioactifs instables, produit d'autres radionucléides qui, sous certaines conditions (dépendant de la pression, la température, l'acidité, etc.) se retrouvent en surface, ce qui leur confère une certaine mobilité et peuvent, de ce fait, être transportés à partir du réservoir à la surface avec les produits du pétrole et du gaz lors de la récupération de ces derniers (DOYI, et al., 2016).

Pendant le processus de production, les NORM sont entraînés avec le pétrole, le mélange de gaz et d'eau et s'accumule sous forme de dépôt (scale) et de boues. Il peut également former un film mince sur les surfaces intérieures des équipements et des séparateurs d'installations de traitement de gaz. Le niveau d'accumulation des NORM peut varier

sensiblement d'une installation à une autre en fonction de la formation géologique, de l'exploitation ... etc.

Pour déterminer s'il y a risque de contamination au NORM, au niveau des installations, une étude sur site sur les déchets NORM, ainsi qu'un échantillonnage et une analyse doivent être menées. Les NORM peuvent être accumulés, comme le montre la Figure I.3, au niveau des têtes de puits sous forme de dépôts ; dans les installations de séparation gaz / pétrole (GOSP) sous forme de boues; et dans les installations de gaz sous forme de films minces à la suite de la désintégration du radon gazeux. (The International Association of Oil & Gas Producers, 2008).

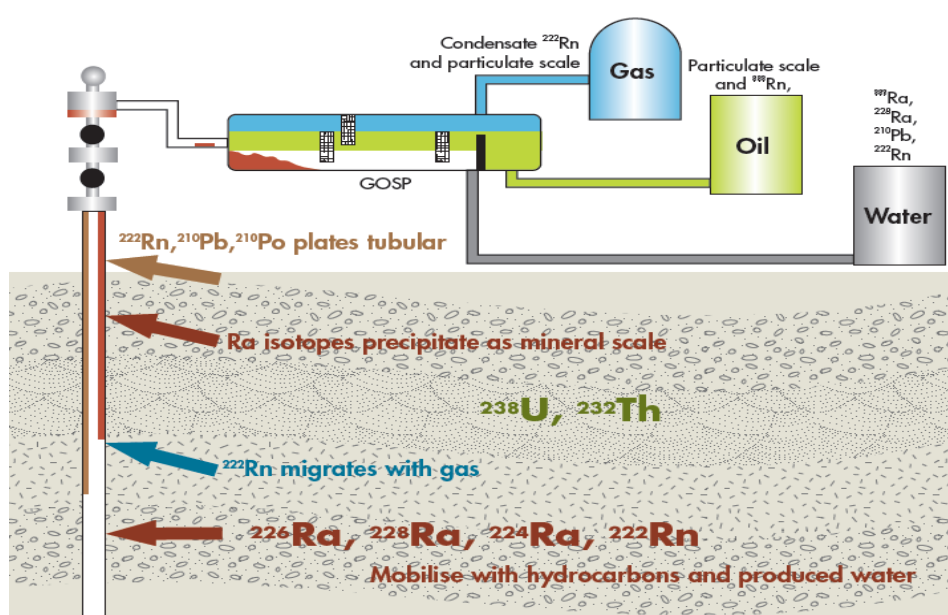


Figure 0.3 Origines des NORM : points d'accumulation et de déposition dans les différentes installations d'exploitation du pétrole et du gaz (The International Association of Oil & Gas Producers, 2008)

I.1.3.1. Mécanisme de formation des NORM

Au cours de l'exploitation du forage, l'eau produite peut devenir de plus en plus saline, indiquant la coproduction de saumure. Cela peut contribuer à la dissolution des éléments du groupe II du tableau périodique, contenus dans la roche réservoir - y compris le radium –, de même que l'injection d'eau de mer utilisée pour augmenter le débit de production, peut également contribuer à la dissolution de ces derniers.

Lorsque les ions des éléments du groupe II du tableau périodique, notamment le radium, sont présents dans l'eau de production, les changements de pression et de température, les forces centripètes générées par l'écoulement turbulent du fluide (pétrole et gaz) et les sites de nucléation favorisent la formation de *scales* – des précipités solides de sulfates ou de

carbonates. De plus, les particules d'argile ou de sable coproduit à partir du réservoir peuvent aussi agir comme surfaces initiatrices pour la formation de dépôts de tartre ou alors ils peuvent adsorber les cations. La fraction de radium qui n'est pas précipitée sous forme de *scales* se retrouve dans les boues d'extraction.

Les études sur les NORM issus de différentes exploitations de pétrole et de gaz, montrent que les solides présents dans le fond des bacs de stockage et sur la paroi interne des pipelines de la production pétrolière et les installations gazières ne contiennent pas les éléments primordiaux qui sont l'U-238 et le Th-232 (JONKERS, et al., 1997). Ces éléments ne sont pas entraînés de la roche réservoir qui contient le pétrole, le gaz et l'eau (Figures I.3 et I.4). L'eau du réservoir contient des cations du Groupe II du tableau périodique, le calcium, le strontium, le baryum et le radium dissous à partir de la roche réservoir. Par conséquent, elle contient les isotopes du radium, le Ra-226 de la série de désintégration de l'U-238, le Ra-228 ainsi que le Ra-224 de la série de désintégration du Th-232 (Figure I.4). Ainsi, les trois isotopes du radium apparaissent, sans leurs parents, dans l'eau coproduite avec le pétrole. Le Th-228 est parfois détecté dans les anciennes boues et les scales, probablement présent comme produit de la désintégration du Ra-228 entraîné (KINSEY, 1997).

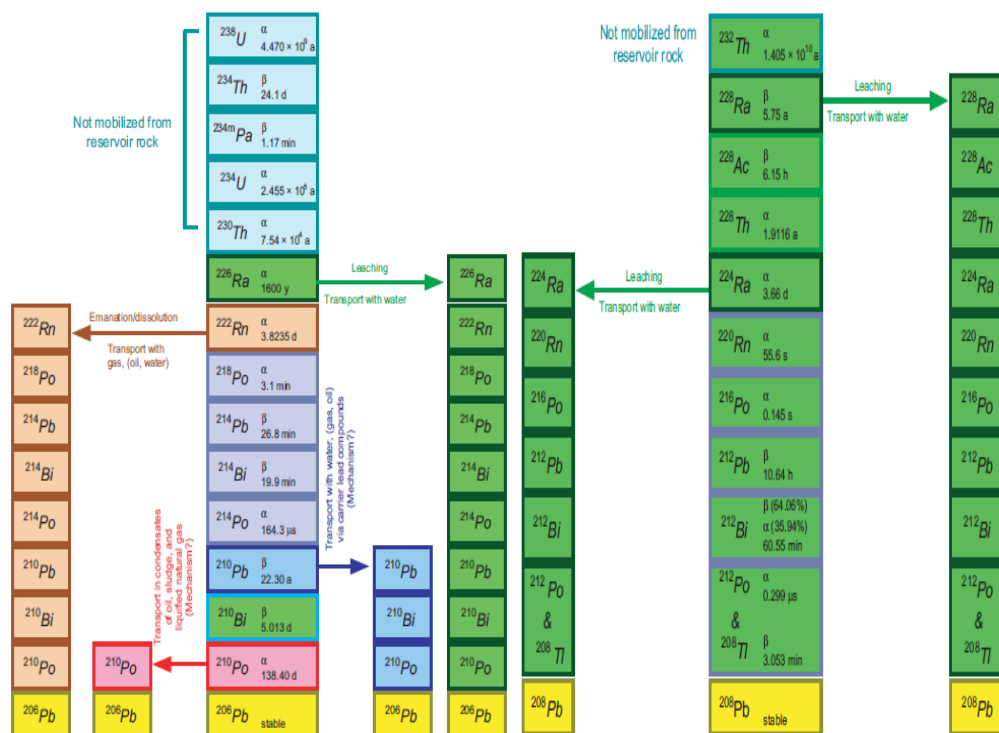


Figure 0.4 Chaîne de désintégration de l'U-238 et du Th-232 avec le processus d'entraînement des différents radionucléides (The International Association of Oil & Gas Producers, 2008)

Le flux mixte de pétrole, de gaz et d'eau entraîne également le gaz noble Rn-222 qui est généré dans la roche réservoir par décroissance du Ra-226. Ce gaz radioactif issu des zones de production, se déplace avec le flux de gaz-eau, puis suit, de préférence, les gaz secs de production (Figure I.3 et I.4). Par conséquent, les équipements de traitement et de transport de gaz peuvent accumuler un film très mince de Pb-210 formé par la désintégration radioactive des descendants à vie courte du Rn-222, qui ont la possibilité d'adhérer aux surfaces intérieures des conduites de gaz. Ces dépôts de Pb-210 sont également rencontrés dans les usines de traitement du gaz naturel liquéfié (McLENNAN, 1904), (SUMMERLIN, et al., 1985).

Un autre mécanisme, très différent résulte de l'entraînement de plomb stable de la roche réservoir. En effet, cette dernière contient des concentrations relativement élevées de radionucléide Pb-210. Ce mécanisme, qu'on n'arrive pas à expliquer, a été observé dans un certain nombre de champs de production de gaz (JONKERS, et al., 1997). Le résultat de ce phénomène est la formation de dépôt mince de couches de plomb sur les surfaces internes d'équipements de production, ainsi que l'apparition de plomb stable et de plomb radioactif, le Pb-210, dans les boues. Les condensats extraits sous forme de liquide du gaz naturel, peuvent contenir des niveaux relativement élevés de Rn-222 et de Pb-210. En outre, le Po-210 est observé à des niveaux dépassant des niveaux de son générateur le Pb-210, indiquant une émanation directe du réservoir (Figure I.4).

1.1.3.2. Principales formes d'apparition des NORM

Les principales formes d'apparition des NORM dans la production de pétrole et de gaz sont le dépôt (scale), la boue, le sable et les dépôts en film mince de descendants du radon. Leur formation dépend de certains paramètres du réservoir et peut être déclenchée par l'injection d'eau (Tableau I.2).

Tableau 0.2. Principales formes des NORM dans les installations pétrolières et gazières (KINSEY, 1997)

Type	Nucléides	Caractéristiques	Lieux d'occurrence
Dépôt (radium)	Radium-226 Radium-228 + descendants	Dépôt dur de sulfates et carbonates de calcium, strontium et baryum	Parties humides des installations pétrolières
Boue (radium)	Radium-226 Radium-228 + descendants	Sable, argile, paraffine, métaux lourds	Séparateurs Ecumoire
Dépôts de plomb	Plomb-210 + descendants	Dépôts de plomb stable	Parties humides des installations de gaz
Film de plomb	Plomb-210 + descendants	Film très mince	Transport et traitement du pétrole et du gaz
Condensat	Plomb-210		Production de gaz
Gaz naturel	Radon-222	Gaz noble	Domaine de la consommation
Eau de formation	Radium-226 Radium-228 Et/ou Plomb-210	Plus ou moins saline En grand volume dans la production pétrolière	Dans toute installation de production

I.1.3.2.1. NORM sous forme de dépôts

Les principaux types de dépôts (scales) rencontrés dans les installations de pétrole et de gaz sont sous forme de sulfates tels que BaSO_4 , SrSO_4 et des dépôts sous forme de carbonate tel que le CaCO_3 . Du fait que le radium soit chimiquement similaire au baryum (Ba), strontium (Sr) et au calcium (Ca), il coprécipite avec le Sr, Ba ou Ca formant des dépôts de sulfate de radium, carbonate de radium et, dans certains cas, silicate de radium.

Le mélange d'eau de mer, qui est riche en sulfate, avec l'eau de formation, qui est riche en saumure, augmente la tendance à l'entartrage. De plus, le changement brusque de pression et de température ou encore l'acidité de l'eau de formation, contribue à intensifier l'accumulation. Cette accumulation de tartre à l'intérieur d'un tuyau est illustrée sur la Photo I.1. Ce phénomène influe négativement sur la production de pétrole, de telle sorte, qu'il réduit la capacité de transport du pétrole par pipeline, et ce, en diminuant son diamètre hydraulique.

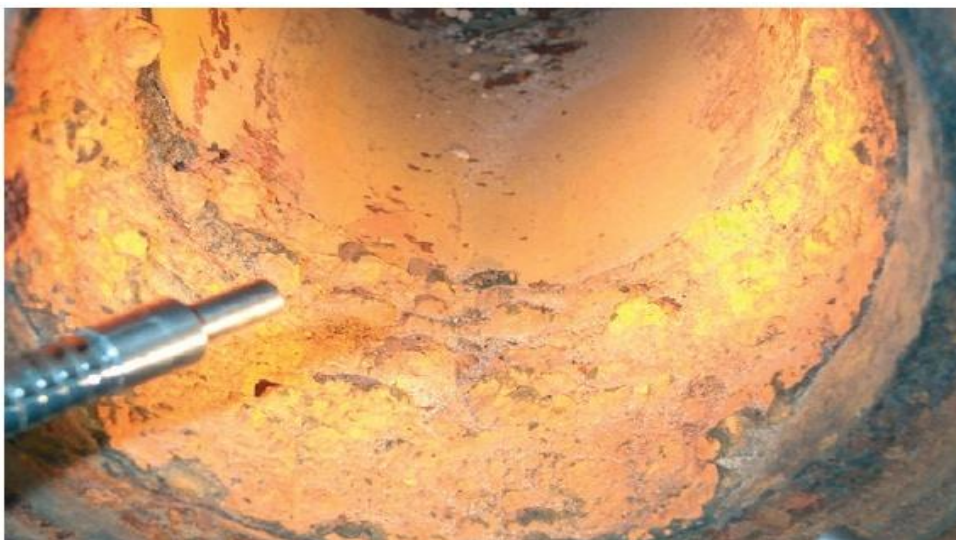


Photo 0.1 Accumulation de NORM à l'intérieur d'un pipeline (The International Association of Oil & Gas Producers, 2008)

I.1.3.2.2 NORM sous formes de boues

Les molécules radioactives contenant du radium qui ne sont pas incorporés dans les dépôts peuvent se retrouver dans les boues, sables et l'eau produite. D'autres radionucléides comme le plomb-210 et le polonium-210 peuvent également se retrouver dans les pipelines ainsi que dans les boues accumulées dans les fonds des réservoirs, séparateurs gaz/pétrole, les navires de transport de gaz naturel liquide (GNL), les réservoirs de stockage et dans les fosses de déchets ainsi que dans les raclures de pipelines du pétrole brut (The International Association of Oil & Gas Producers, 2008).

I.1.3.2.3 Autres formes de NORM

Un autre type de NORM associé à la production de pétrole a été rapporté (BIRD, et al., 2002), qui est le dépôt d'encrassement biologique de corrosion (Biofouling). Ce dépôt se produit dans diverses parties du système d'injection d'eau de mer, y compris les puits d'injection et le fond des pipelines. Les dépôts d'encrassement biologique, s'avèrent contenir des concentrations beaucoup plus élevées d'uranium provenant de l'eau de mer (où il est présent dans des concentrations de quelques parties par milliard). Cette concentration est causée par la présence de bactéries favorables aux conditions anaérobies et qui sont sulfato-réductrices. Le dépôt de tartre interfère à long terme avec le processus de production en bloquant le transport des fluides à travers les conduites d'écoulement des fluides (gaz et/ou pétrole) et les conduites d'eau produites, et peut représenter un risque sur le plan sécurité du fonctionnement des installations.

1.1.3.3. Concentrations de radionucléides dans NORM

Plusieurs données ont été recueillies sur la concentration radioactive des NORM, bien que relativement peu de rapports aient été publiés. Il s'avère que la concentration radioactive en Ra-226, Ra-228 et Ra-224 dans les dépôts (scales) et les boues varie de moins de 0,1 Bq/g jusqu'à 15 000 Bq/g (JONKERS, et al., 1997) (Tableau I.3). En général, les concentrations d'activité des isotopes de radium dans les boues sont moins importantes que dans les scales. (Agence Internationale de l'Energie Atomique AIEA (a), 2003).

Tableau 0.3. Concentrations des NORM issus de l'industrie du gaz et du pétrole
(JONKERS, et al., 1997)

Radionucléide	Pétrole (Bq/g)	Gaz naturel (Bq/m³)	Eau produite (Bq/L)	Scale (Bq/g)	Boue (Bq/g)	Limite d'exemption (Bq/g)
U-238	0,0000001 – 0,01	-	0,0003 – 0,1	0,001 – 0,5	0,005 – 0,01	10
Ra-226	0,0001 – 0,04	-	0,002 - 1200	0,1 - 15000	0,05 - 800	10
Po-210	0 – 0,01	0,002 – 0,08		0,02 – 1,5	0,004 - 160	10
Pb-210	-	0,005 – 0,02	0,05 - 190	0,02 - 75	0,1 - 1300	10
Rn-222	-	5 - 200000	-	-	-	10
Th-232	0,00003 – 0,002		0,0003 – 0,001	0,001-0,002	0,002 – 0,01	1
Ra-228	-	-	0,3 - 180	0,05 - 2800	0,5 - 50	10
Ra-224	-	-	0,5 - 40	-	-	10

1.1.3.4. Remédiations au problème de formation des dépôts NORM

L'accumulation des dépôts NORM sur les parois internes des pipelines a engendré une diminution du débit de transport des fluides (gaz et/ou pétrole). Ce problème a conduit à la recherche d'une solution pour diminuer et empêcher la déposition de scales. Des inhibiteurs chimiques ou des acides sont donc utilisés. Leur emploi n'est pas encore maîtrisé et n'a évidemment pas comme résultat de réduire le taux global de radioactivité. Il vise seulement à empêcher la réduction du diamètre hydraulique des canalisations. Ces éléments chimiques inhibiteurs de scale, s'appliquent au niveau du système d'injection d'eau de mer juste en aval de la tête de puits, ou dans le puits de production (HEN, et al., 1995). Dans la mesure où ces produits chimiques empêchent la formation des dépôts de sulfates et de carbonates, les radioisotopes vont passer à travers le système de production et être libérés avec l'eau produite. Cependant, Des méthodes de détartrage chimique sont appliquées in situ en utilisant des dissolvants de scales lorsque leur déposition interfère sur

la production et lorsque l'élimination mécanique n'est pas possible (FORD, et al., 1996), (FIELDER, 1994).

I.2. Risques sanitaire des NORM

En l'absence de mesures appropriées de radioprotection, les NORM de l'industrie du pétrole et du gaz peuvent provoquer une exposition externe pendant la production en raison d'une accumulation de radionucléides émetteurs gamma. Il se peut également, qu'il y ait un risque d'exposition interne des travailleurs, en particulier, lors de l'entretien, le transport des déchets et d'équipements contaminés, la décontamination du matériel, le traitement et l'élimination des déchets. Des expositions de nature similaire peuvent également survenir pendant le déclassement des installations de production de pétrole et du gaz et ainsi que lors des différentes étapes de gestion des déchets associés.

I.2.1. Exposition externe

Les NORM qui se forment au niveau des parois internes des tuyaux et au fond des séparateurs sous forme de dépôts (scale) et/ou de boues contaminées peuvent être à l'origine de l'exposition des personnes travaillant à proximité de ces installations. En effet, des débits de doses importantes à l'intérieur et en dehors de ces installations peuvent être enregistrés (Tableau I.4). La limite réglementaire pour le public à ne pas dépasser est de **1 mSv/an**, ce qui correspond à un débit de dose de **0,5 µSv/h** suivant les heures de travail annuelles des travailleurs (2000 h/an) (Décret présidentiel n° 05-117, 2005).

Tableau 0.4 Débits de dose gamma autour de quelques installations pétrolières
(JONKERS, et al., 1997)

Points de mesures	Débit de dose (µSv/h)
Soupapes de sécurité (interne)	> 300
Têtes de puits, collecteur de production	0,1 – 22,5
Lignes de production	0,3 - 4
Séparateur (scale, mesure interne)	> 200
Séparateur (scale, mesure externe)	> 15
Sortie d'eau	0,2 – 0,5

Les isotopes de radium contenus dans les NORM, en particulier le Ra-226, émettent un rayonnement gamma capable de pénétrer les parois de ces installations, et le photon de haute énergie émis par le Tl-208 (l'un des descendants du Th-228) peut contribuer de manière significative au débit de dose sur les surfaces extérieures des installations pétrolières sur plusieurs mois d'accumulation des dépôts NORM. Le débit de dose

dépendra de la quantité et des concentrations en activité des radionucléides présents et aussi de l'épaisseur des parois. Les débits de dose maximaux sont généralement de l'ordre de quelques microsieverts par heure. Dans des cas exceptionnels, les débits de dose mesurés directement sur les surfaces extérieures d'installations de production ont atteint plusieurs centaines de microsieverts par heure (JONKERS, et al., 1997), (VAN WEERS, 1997), ce qui représente environ **1000 fois** les valeurs du bruit de fond dus aux rayonnements cosmiques et rayonnements telluriques. L'accumulation des dépôts de radium peut être contrôlée sans ouverture de l'installation ou de l'équipement (Photo I.2). Dans le cas de nécessité d'ouverture du système, pour l'entretien ou pour d'autres fins, les débits de dose seront plus importants.

L'exposition externe peut être limitée en respectant les mesures de radioprotection, à savoir, la maximisation de la distance et la minimisation de la durée d'exposition, sur les composantes impliquées. Dans la pratique, les restrictions sur l'accès et le temps d'occupation se sont avérés efficaces pour la limitation des doses annuelles à des valeurs faibles.



Photo 0.2 Mesure du débit de dose au niveau d'un pipeline (National Radiological Protection Board, UK) (The International Association of Oil & Gas Producers, 2008)

I.2.2. Exposition interne

L'exposition interne aux NORM peut résulter de l'ingestion ou l'inhalation des radionucléides contenus dans les NORM. Cela peut se produire en travaillant à l'intérieur des installations ouvertes et/ou sur des équipements ouverts, la manipulation des déchets et des objets de surface contaminée et pendant le nettoyage d'équipements contaminés. L'ingestion peut également se produire si des précautions ne sont pas prises avant de manger, boire, fumer, etc...

Des précautions sont nécessaires pendant les opérations mentionnées ci-dessus pour contenir la contamination radioactive et empêcher son transfert vers les zones où d'autres personnes pourraient également être exposées. Les caractéristiques des dépôts (scales) et des boues exigent également des mesures de sécurité classiques, donc le risque d'ingestion de NORM reste relativement faible. Cependant, le nettoyage de surfaces contaminées pendant la réparation, le remplacement, la rénovation ou d'autres opérations peuvent générer la dispersion des matières radioactives dans l'air, en particulier si les techniques sèches abrasives sont utilisées. L'exposition à l'inhalation pourrait devenir significative si l'équipement de protection individuel (y compris les protections respiratoires) et/ou si les contrôles techniques ne sont pas utilisés. La dose engagée potentielle de l'inhalation dépend à la fois des caractéristiques physiques et chimiques des NORM.

I.2.3. Procédures de décontaminations favorisant des risques sanitaires liés à l'exposition aux NORM

Différents procédés de décontamination des NORM sont appliquées. Le choix de la méthode est en fonction du type, de la taille des composants et des caractéristiques de la substance contaminante. Les méthodes varient du retrait de boue en vrac des séparateurs (Photo I.3) suivi d'un rinçage avec de l'eau, à l'application de techniques chimiques ou mécaniques abrasives. Les méthodes spécifiques de décontamination des NORM sont décrites brièvement dans le Tableau I.5.



Photo 0.3 Opération d'extraction de boue d'un séparateur (Atomic Energy Commission of Syria)) (The International Association of Oil & Gas Producers, 2008)

Tableau 0.5 Méthodes de décontamination des NORM (The International Association of Oil & Gas Producers, 2008)

Méthode	Remarque
Détartrage et nettoyage manuel	N'implique aucune machine. Simple lavage manuel ou pelletage. Couramment utilisé pour enlever le sable et la boue des équipements.
Détartrage mécanique par perforation ou alésage	Couramment utilisé pour éliminer le tartre (dépôts durs) de types tubulaires et d'autres équipements de surface contaminée. Les processus de forage humides devraient être utilisés pour réduire/empêcher la génération de poussières radioactives. Doit être fermé pour contenir les contaminants et l'eau de lavage doit être filtrée pour éliminer le tartre.
Jet d'eau à haute pression (HPWJ)	Couramment utilisé pour éliminer le tartre (dépôts durs) de types tubulaires et d'autres équipements de surface contaminée. Fournit une élimination efficace de scale et réduit la production de poussière en gardant le matériau humide. Doit être fermé et l'eau de lavage est filtrée.
Aspiration	Processus humides ou secs pour l'élimination de la contamination de particules en vrac.
Détartrage chimique	Les produits chimiques sont également utilisés pour éliminer les films minces de NORM des équipements de traitement de gaz.
Fusion	La plupart des NORM finissent dans le laitier (résidu de fusion), mais les radionucléides volatils se retrouvent dans la poussière de gaz et de fumées.

1.2.3.1. Détartrage chimique

Les méthodes chimiques sont appliquées et sont encore en cours d'élaboration pour l'élimination et la prévention de la formation de tartre (inhibiteurs de scales) (FORD, et al., 1996), (FIELDER, 1994), (IBC Technical Services, 1997)(ODDO, 1993), (EYLANDER, et al., 1997). Il s'avère que, bien souvent, l'application des inhibiteurs de scales ne parvient pas à éviter la formation des dépôts, cette situation peut interférer négativement sur la production et/ou peut compromettre la sécurité de fonctionnement des installations. Dans ce cas, il est nécessaire d'effectuer un détartrage de ces installations.

Les méthodes chimiques sont appliquées lorsque les surfaces à décontaminer ne sont pas accessibles pour le traitement mécanique, ou lorsque le traitement mécanique peut causer des dommages sur les composants en cours de rénovation, ou bien lorsque le dépôt contaminé ne peut pas être éliminé mécaniquement. Les produits chimiques utilisés sont

basés sur des mélanges d'acides ou une combinaison d'acides et d'agents complexants. Habituellement, la principale raison d'un tel détartrage est de rétablir ou de maintenir le taux de production et non pas par souci d'éliminer la contamination radioactive. Le détartrage chimique permet d'éliminer les radionucléides contenus dans les dépôts, résultant en un flux de liquide riche en radionucléides, se concentrant dans les dépôts solides dissous. Dans de nombreux cas, une certaine dissolution du métal constituant le composant au cours de l'opération de décontamination ne peut être évitée.

I.2.3.2. Méthodes abrasives

Des méthodes abrasives sèches et humides, utilisant des dispositifs portatifs peuvent être appliquées pour éliminer le tartre sur des installations, ayant des surfaces facilement accessibles. Le sablage à sec, le fraisage, le meulage et le polissage sont normalement à éviter en raison du risque de propagation de la contamination radioactive dans l'air. En revanche, en utilisant des méthodes abrasives humides, ce risque est considérablement réduit.

La technique du jet d'eau à haute pression HPWJ (High Pressure Water Jet) s'avère être une méthode efficace pour la décontamination de composants de production de pétrole et de gaz (Photo I.4). La pression de l'eau utilisée est de 10-250 MPa. Cependant, il est impératif de veiller à la sécurité radiologique lors de son application. Il faut donc faire, au préalable, évaluer l'impact exact du jet d'eau, afin de confiner la brume résultante et afin de collecter et d'éliminer l'eau ainsi que les dépôts (VAN WEERS, 1997).



Photo 0.4 Travailleurs en tenue de protection individuelle utilisant la HPWJ (Atomic Energy Commission of Syria) (The International Association of Oil & Gas Producers, 2008)

I.2.4. Mesures de radioprotection pour les NORM de l'industrie du pétrole et du gaz

Les exigences en matière de radioprotection et de sûreté appliquées aux NORM issues des installations de l'industrie du gaz et du pétrole ont été établies dans le BSS (Basic Safety Standard) (FAO, IAEA, ILO, OECD NUCLEAR ENERGY AGENCY, PAN AMERICAN HEALTH ORGANIZATION, WHO, 1996).

L'objectif commun, dans toutes les situations est de garder les doses d'exposition aussi basses qu'il est raisonnablement possible, en tenant compte des facteurs socio-économiques (ALARA), et que ces doses soient en dessous des limites de dose réglementaires pour les travailleurs (IAEA, INTERNATIONAL LABOUR OFFICE, 1999). Les mesures pratiques qui doivent être prises pour atteindre ces objectifs diffèrent particulièrement pour les deux types d'exposition aux radiations: l'irradiation externe et la contamination interne.

I.2.4.1. Mesures de radioprotection contre l'exposition externe

La présence de NORM dans les installations est peu susceptible de provoquer des expositions externes approchant ou dépassant les limites de dose annuelle pour les travailleurs. En effet, les débits de dose externes de NORM rencontrés dans la pratique sont généralement faibles, de telles sortes, que des mesures de protection ne sont pas nécessaires. Dans des cas exceptionnels où on rencontre des débits de dose importants mais localisés, les règles de base suivantes peuvent être appliquées pour minimiser toute exposition externe et sa contribution à la dose totale:

- a) Minimiser la durée d'exposition externe;
- b) Faire en sorte que les distances optimales soient maintenues entre toute accumulation de NORM (partie d'installation) et des personnes potentiellement exposées;
- c) Mettre en place un matériau de blindage entre les NORM et les personnes potentiellement exposées.

Les deux premières mesures, dans la pratique, impliquent la désignation des zones surveillées ou contrôlées dont l'accès est limité ou exclu. L'utilisation de moyens de protection est une solution efficace pour réduire les débits de dose de rayonnement, mais il est peu probable qu'il puisse être appliqué à cause d'une accumulation en vrac de NORM.

Toutefois, le principe peut être appliqué en veillant à ce que les déchets NORM restent enfermés dans l'enceinte des installations en acier épais, type séparateurs, qui permettent une protection efficace, en attendant l'élimination et le détartrage des déchets NORM. Si de grandes quantités de déchets NORM de haute activité spécifique sont stockés, une

certaine forme de blindage localisé avec des déchets ou des matériaux d'activité plus faible peut être nécessaire pour réduire les taux de dose gamma à l'extérieur de l'installation de stockage des déchets à des niveaux suffisamment bas (The International Association of Oil & Gas Producers, 2008).

1.2.4. 2. Mesures contre l'exposition interne

En l'absence de mesures de contrôle appropriées, l'exposition interne peut résulter de l'ingestion ou l'inhalation de NORM tout en travaillant avec des matériaux non confinés ou comme une conséquence de la dispersion incontrôlée de la contamination radioactive. Le risque d'ingestion ou l'inhalation de toute contamination radioactive présente est minimisée en respectant les règles de base suivantes:

- a) Utiliser correctement des vêtements de protection afin de réduire le risque de transfert de la contamination ;
- b) Ne pas fumer, boire, manger ou mâcher (par exemple mâcher du chewing gum), ne pas utiliser de produits cosmétiques (y compris les crèmes médicales ou écran total, etc...), éviter toute autre action qui augmente le risque de transfert de matières radioactives sur le visage pendant le travail ;
- c) Utiliser un équipement de protection respiratoire, pour éviter l'inhalation de toute contamination radioactive aéroportée ;
- d) Travailler, dans la mesure du possible, avec des déchets NORM humides ou confinés afin d'éviter et de prévenir la contamination par des poussières radioactives;
- e) Mettre en œuvre les bonnes pratiques d'entretien pour empêcher la propagation de la contamination NORM;
- f) Respecter les règles d'hygiène industrielles telles que le lavage minutieux des mains après chaque fin de travail et le nettoyage des vêtements de protection (INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, 2012).

Conclusion

Parmi les industries qui concentrent la radioactivité naturelle (NORM) et génèrent d'importantes quantités de déchets NORM, se trouve l'industrie du gaz et du pétrole sur laquelle repose l'économie algérienne.

Les eaux de formation des réservoirs de pétrole et de gaz contiennent sous forme dissoute une certaine concentration en radium (Ra-226 et Ra-228) et ses produits de désintégration. Seuls ces derniers, sont entraînés à la surface lors du pompage du pétrole et les modifications de pression et température qui en résultent peuvent conduire à la formation de *scales* – des précipités solides de sulfates ou de carbonates. La fraction de radium qui n'est pas précipitée sous forme de *scales* se retrouve dans les boues d'extraction.

Durant toute la durée de vie d'un puits, les NORM peuvent être pratiquement absents au début, mais à force de son exploitation, les dépôts NORM se forment. De plus, il n'y a ni concentrations typiques de radionucléides dans les NORM de production de pétrole et de gaz, ni quantités typiques de *scales* et de boues produites chaque année ou sur la durée de vie d'un puits.

Bien que les niveaux de radioactivité de ces matériaux NORM restent généralement modérés, une exposition prolongée à ces matériaux peut, dans certaines circonstances, devenir significative et dépasser les limites légales d'exposition.

Les principaux éléments caractérisant les NORM sont le Ra-226 et ses descendants. Les caractéristiques physicochimiques du radium, notamment ses émissions alpha et gamma, font de lui un élément redouté en cas d'exposition interne ou externe.

II. Matériels et méthodes

Introduction

Dans ce chapitre, nous exposons les techniques analytiques ainsi que les protocoles expérimentaux adoptés. En premier lieu, nous décrivons la mesure radiométrique par spectrométrie gamma qui est la technique utilisée pour quantifier la radioactivité. Ensuite, nous parlerons du prélèvement et de la préparation des échantillons NORM. Par la suite, nous décrivons la technique de caractérisation utilisée qui est la spectrométrie de fluorescence des rayons X pour l'analyse chimique élémentaire. Enfin, nous décrivons les différents protocoles expérimentaux utilisés lors des traitements chimiques, pour la spéciation du radium dans les NORM ou lors de l'extraction acide pour réduire cette radioactivité.

II.1. Mesures radiométriques par spectrométrie gamma du radium

II.1.1. Caractéristiques physico-chimiques du radium

Découvert en 1898 par Pierre et Marie Curie, le radium est un métal alcalinoterreux qui ne possède aucun isotope stable. Sa température de fusion est de 696 °C et sa température d'ébullition est de 1737 °C (AMMERICH, et al., 2014).

Parmi les 25 isotopes radioactifs du radium, le Ra-226 est majoritaire. Il résulte de la chaîne de désintégration de l'U-238 (Figure II.1).

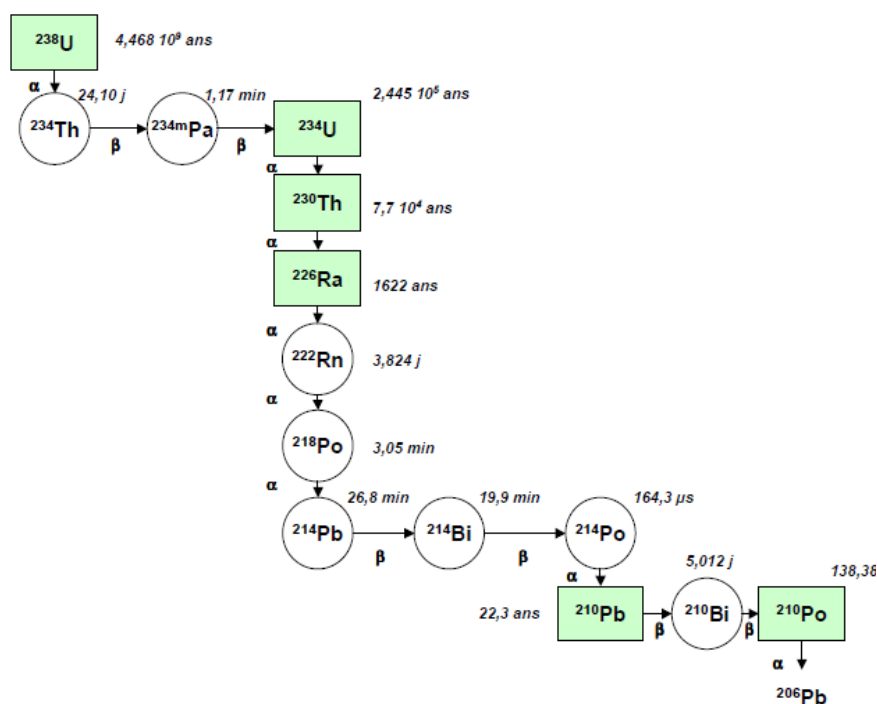


Figure 0.5 Chaîne de désintégration du Ra-226 (AMMERICH, et al., 2014)

Les émissions principales du Ra-226 sont l'émission alpha, avec une énergie de 4784 keV (94%), ainsi que l'émission γ avec une énergie de 186 keV (3%) (BROWNE, et al., 1986),(ICRP (International Commission on Radiological Protection), 1983).

Suivant ces deux modes de désintégration, le radium peut être mesuré, soit par spectrométrie alpha ou par spectrométrie gamma. D'autres techniques de mesure sont également utilisées (émanométrie, comptage alpha beta total ...etc.).

Dans notre étude, toutes les mesures de l'activité du Ra-226 sont faites par spectrométrie gamma. Cette technique ne demande aucun traitement de l'échantillon, en plus d'être une technique non destructive.

II.1.2. Mesure par spectrométrie gamma

Les mesures de l'activité du radium extrait ont été faites de façon non destructive en utilisant la spectrométrie gamma (détecteur: Germanium de haute pureté-GeHP (CANBERRA), modèle: GC3018, la haute tension de polarisation: + 3500 V, son efficacité relative: 30 %, la résolution (FWHM): 1.8 keV à 1.332MeV pour Co-60 (Photo II.1).



Photo 0.5 Chaine de spectrométrie gamma

L'acquisition des données a été recueillie par un analyseur multi canal (MCA) en utilisant un logiciel de traitement Génie 2000 (CANBERRA France, 2010). Des sources ponctuelles de Co-60 et de Cs-137 sont utilisées pour l'étalonnage en énergie. L'étalonnage en efficacité a été effectué en utilisant les standards liquides et solides, préalablement préparés à partir d'une source mixte certifiée.

II.1.2.1. Principe de la spectrométrie gamma

Le principe de la spectrométrie gamma est basé sur l'interaction des rayonnements avec des matériaux, conçu dans le but de nous renseigner sur la distribution énergétique des rayonnements gamma émis par une source radioactive.

Chaque rayonnement gamma possède une énergie précise, car il résulte d'une désexcitation du noyau formé après désintégration. Ainsi, les niveaux d'énergies des noyaux sont quantifiés.

De ce fait, l'énergie d'un photon γ émis par un noyau X correspond forcément à une transition énergétique du noyau X. Pour chaque noyau, il peut y avoir plusieurs transitions possibles pour revenir à son état fondamental ; il peut donc émettre des rayons γ de différentes énergies.

Les matériaux utilisés peuvent être des semi conducteur [NaI(Tl)] ou bien des scintillateurs inorganiques [Ge HP]. Le spectre obtenu traduit les différentes interactions élémentaires du rayonnement dans le cristal de germanium.

La mesure par spectrométrie gamma permet d'avoir une analyse qualitative et quantitative d'échantillons. Grâce aux dépôts d'énergie que la source radioactive transmet au milieu détecteur, il est possible d'identifier le radionucléide dont il s'agit. Il est aussi possible d'estimer l'activité correspondante après avoir effectué un étalonnage au préalable (BRAMKI, 2011).

II.1.2.1.1 Chaîne de spectrométrie gamma

La chaîne de spectrométrie gamma a pour but de relier le signal électrique à l'énergie déposée dans le cristal et ensuite de comptabiliser les différentes énergies obtenues.

Les composantes d'une chaîne de spectrométrie gamma sont :

- **Le préamplificateur:** le signal à l'entrée n'est pas proportionnel à l'énergie déposée dans le cristal, mais son intégrale est égale à la charge collectée qui dépend de l'énergie déposée. Le préamplificateur est un montage intégrateur qui va intégrer le signal pour faire le lien avec l'énergie.
- **L'amplificateur:** qui sert à la mise en forme du signal et à son amplification. Le but est de minimiser le bruit et d'obtenir un signal gaussien.
- **Le convertisseur analogique-numérique et l'analyseur multicanaux:** à la sortie de l'amplificateur, on a un signal continu, le convertisseur transforme l'amplitude du signal en

un nombre qui est proportionnel à l'énergie déposée dans le cristal. Ensuite l'analyseur multicanaux collecte, classe et enregistre les informations dans différents canaux où chaque canal correspond à une énergie.

Cela permet d'obtenir un histogramme en temps réel dans lequel l'énergie déposée dans le cristal est reliée au numéro de canal et le nombre de coup dans un canal donné est proportionnel au nombre de photons ayant déposé la même énergie dans le cristal (CHEVALLIER, 2012).

II.1.2.1.1. Etalonnage de la chaîne de spectrométrie gamma

Etalonnage en énergie

Le logiciel GENIE 2000 est utilisé pour le traitement et l'analyse du signal. Il permet d'avoir un spectre avec le numéro de canal en abscisse et le nombre coups dans le canal correspondant. Ce spectre correspond à un histogramme représentant le nombre de photons mesurés en fonction de leur énergie.

Un étalonnage en énergie est donc nécessaire à l'identification des éléments radioactifs, en établissant une relation linéaire entre le numéro de canal et l'énergie déposée dans le cristal (Figure II.2).

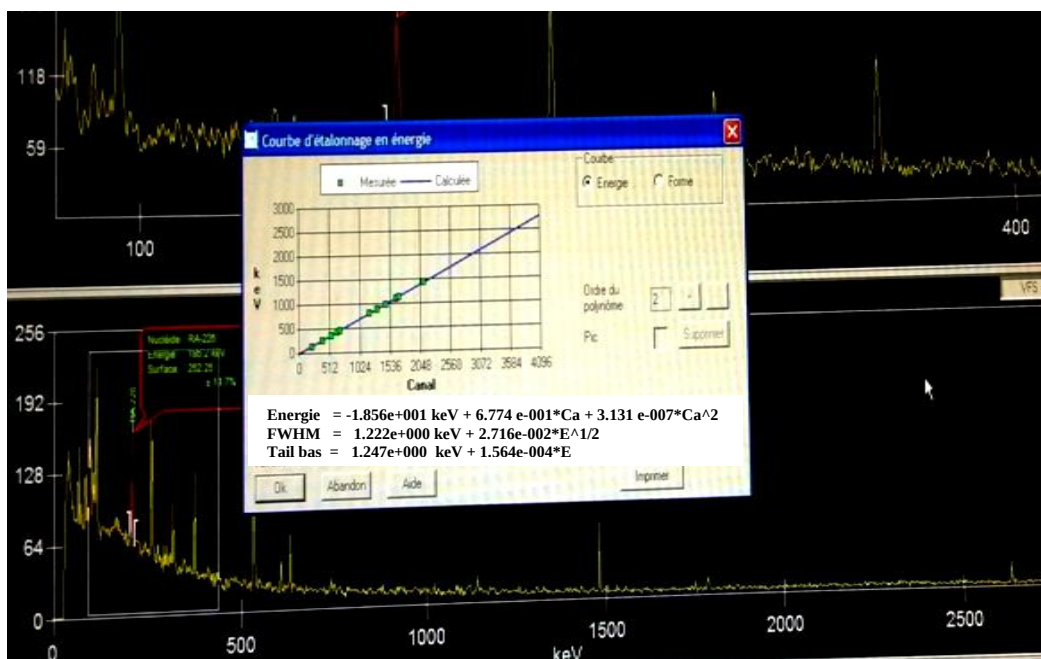


Figure 0.6 Courbe d'étalonnage en énergie

Pour cela on utilise une source test (source de calibration) qui émet à des énergies connues. On sélectionne les pics et on leur affecte leur valeur en énergie correspondante. On obtient ainsi le spectre d'un ensemble de pics distribués en énergie.

Les pics obtenus représentent l'énergie des photons incidents et permettent d'identifier le radioélément émetteur de rayonnements gamma. Ils s'étendent sur plusieurs canaux et suivent une loi gaussienne de la distribution de l'énergie, dont la largeur à mi-hauteur varie avec l'énergie (COURTINE, 2007).

Etalonnage en efficacité et préparation des standards

Deux standards ont été préparés pour déterminer l'efficacité des échantillons liquides et solides. Plusieurs géométries ont été choisies (Photo II.2).



Photo 0.6 Préparation des standards solide et liquide

Pour les besoins de notre étude, on a procédé à la préparation d'un standard liquide contenant 15 mL de source mixte (multi gamma) certifiée, ainsi qu'un standard sol préparé par couche, successivement imbibé de source mix avec une micro pipette, afin d'avoir une répartition homogène. Un volume de 6 mL a été nécessaire pour la préparation de ce standard.

Une fois la préparation des standards terminée, on a procédé à une mesure de chacun d'entre eux, pour un temps de comptage d'une heure.

La surface du pic correspond aux nombres de coups par seconde est proportionnelle à l'activité de l'élément (COURTINE, 2007). Par conséquent, une courbe d'étalonnage en efficacité est également créée par le logiciel Génie 2000 (Figure II.3), en fonction des éléments radioactifs constituant les standards.

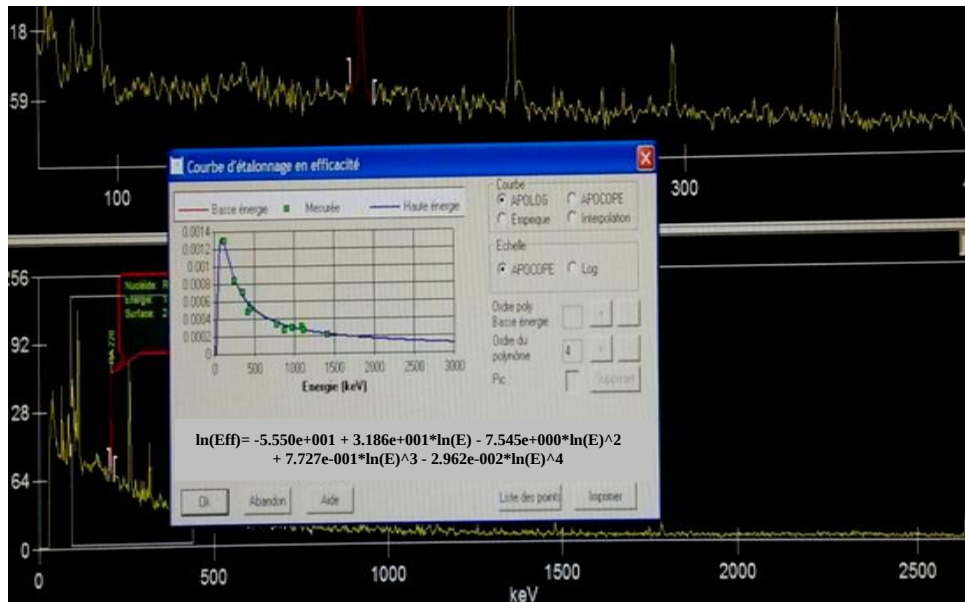


Figure 0.7 Courbe d'étalonnage en efficacité

On définit l'**efficacité** ϵ_γ comme étant le rapport du nombre de photons détectés sur le nombre de photons total émis.

L'efficacité de mesure est déterminée de l'équation suivante :

$$N_{\text{coups mesurés}} = A I_\gamma \epsilon_\gamma t m \quad [\text{II.1}]$$

$$\text{donc} \quad \epsilon_\gamma = \frac{N_{\text{coups mesurés}}}{A I_\gamma t m} \quad [\text{II.2}]$$

A : activité en Bq de la source d'étalonnage (Tableau II.1) ;

I_γ : intensité du rayonnement gamma en %. Pour le Ra-226, il est égal à 3.2% ;

ϵ_γ : efficacité de détection du rayonnement gamma en % ;

t : temps de comptage en seconde (s) ;

m : masse échantillon (g).

Dans notre cas, l'efficacité du standard liquide est égale à **13.02 %** et celle du standard solide est égale à **33.77 %**.

Les caractéristiques de la source standard sont données dans le tableau II.1.

Tableau 0.6 Caractéristiques de la source mixte

Radionucléide	As (Bq/g)	T (jour)	Incertitude sur l'A _s (%)
Am-241	185.30	157800.00	0.40
Cd-109	588.70	462.60	0.90
Ce-139	58.25	137.50	0.50
Co-57	47.65	271.26	0.40
Co-60	107.10	1925.40	0.50
Cs-137	106.30	11019.00	0.80
Hg-203	94.49	46.72	2.00
Sn-113	153.60	115.10	1.90
Sr-85	190.00	64.78	1.00
Y-88	206.00	106.60	0.60
Total	1737.39	-	-

As : Activité spécifique en Bq/g

T : période radiologique

II.1.3. Mesure de la concentration en activité du radium 226

Pour la détermination de la concentration en activité du Ra-226, les échantillons de boues séchés, broyés et homogénéisés ont été mis dans des fioles en polyéthylène identiques à celles utilisées pour la préparation des standards. Les fioles ont été scellées avec de la cire pour garantir leur étanchéité. Cette action est importante pour contenir l'échappement du radon. Les fioles scellées sont stockées pendant 30 jours pour atteindre l'équilibre séculaire entre le radon (Rn-222) et ses descendants à vie courte (Pb-214 et Bi-214) en équilibre avec le radium.

L'activité du Ra-226 a été déterminée en utilisant sa ligne gamma à 186,2 keV avec une intensité relative de 3,51%. Les corrections d'interférences pour la ligne gamma de l'U-235 (à 186,5 keV) n'ont pas été prises en compte, car la concentration en uranium dans ce type d'échantillon est très faible en comparaison avec la concentration du Ra-226. La concentration en uranium dans les différents types de déchets NORM générés par l'industrie pétrolière est inférieure à 0,1 Bq/g (JONKERS et al., 1997) .

L'analyse des radionucléides des déchets NORM est nécessaire avant le traitement chimique, l'élimination ou le déclassé. Les concentrations de radium dans les déchets

NORM sont relativement élevées et restent dans la gamme des valeurs rapportées dans la littérature.

L'activité spécifique A_s est calculée en utilisant la relation suivante (CANBERRA France, 2010):

$$A_s = \frac{S}{t \epsilon \gamma m} \quad [\text{II.3}]$$

S : est la surface du pic du Ra-226 (nombre total de coups) ;

t : temps de comptage en seconde (s) ;

ϵ : efficacité de détection qui est égale à 13.02 % (standard solide) ;

γ : facteur d'embranchement du pic d'énergie 186.1 keV qui est égale à 3.2 % ;

m : masse de l'échantillon (g).

Les résultats des mesures ont été calculés en utilisant la formule suivante:

$$\bar{x} \pm \Delta x, (\pm \sigma, P\%, n) \quad [\text{II.4}]$$

Où $\bar{x}$ est la moyenne des mesures (moyennes des activités spécifiques A_s), P la limite de confiance, Δx la dispersion des résultats individuels, elle est donnée par l'équation suivante:

$$\Delta x = t_s \frac{\sigma}{\sqrt{n}} \quad [\text{II.5}]$$

t_s est le *t statistique* ou *t de Student* pour trois répétitions, ce qui représente environ 2,92 pour un niveau de confiance de 90%. On trouve dans les ouvrages de statistique des tableaux complets donnant t en fonction de N et des limites de confiance (Tableau II.2), σ est l'écart type pour toutes les mesures, n est le nombre de résultats individuels (A.M.H.VAN DER VEEN, 2001).

**Tableau 0.7 Facteur t pour différentes limites de confiance du test de Student
(BOURDILLON, 2001)**

Nombre de mesures	Facteur t pour les limites de confiance			
	80 %	90 %	99 %	99,9 %
2	3,08	6,31	63,7	637
3	1,89	2,92	9,92	31,6
4	1,64	2,35	5,84	12,9
5	1,53	2,13	4,60	8,60
6	1,48	2,02	4,03	6,86
10	1,38	1,83	3,25	4,78
15	1,34	1,76	2,98	3,29

II.2. Préparation des échantillons de déchets NORM

II.2.1. Echantillonnage et séchage des échantillons NORM

L'échantillonnage a été effectué en 2013, au niveau d'une société de production pétrolière, lors d'une opération de révision et de nettoyage des différentes installations. Cette opération a été supervisée par une équipe d'ingénieurs du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA), en collaboration avec une équipe de l'Entreprise Nationale de Services au Puits (ENSP) en charge de l'opération de nettoyage.

L'échantillonnage a été effectué en différents points de chaque installation, afin de garantir une représentativité acceptable. Le but de ces prélèvements est de vérifier l'état de chaque installation et de retirer le dépôt accumulé au fond des installations (bacs de stockages, séparateurs et autres). Au total, 17 échantillons, d'environ 1 kg chacun, ont été collectés (Photo II.3).



Photo 0.7 Echantillons de boue NORM du champ pétrolier

Par la suite, chacun des échantillons a été séché à 80°C dans une étuve (Memmert type UNB 400), jusqu'à atteindre un poids constant. L'opération de séchage s'est étendue sur cinq jours.

II.2.2. Broyage et homogénéisation des échantillons NORM

Pour remédier au risque d'hétérogénéité des échantillons séchés, un broyage a été effectué. Le broyeur utilisé est un broyeur à mâchoires (broyeur Retsch, Fisher Bioblock Scientific). En effet, la mesure des émetteurs gamma doit tenir compte d'un certain nombre de facteurs, à savoir : la géométrie, l'homogénéité, la complexité des spectres et l'étalonnage ; il se trouve que l'homogénéité de l'échantillon est le problème dominant.

Cependant, la notion d'homogénéité d'un mélange de solides, indissociable de celles d'échelles d'observation et de ségrégation, reste difficile à atteindre par la mesure. Par conséquent, il est nécessaire d'adopter l'approche du test d'homogénéité.

Il a été recommandé par plusieurs études d'utiliser l'analyse de la variance (ANOVA) (A.M.H.VAN DER VEEN, 2001). Le concept de base est que les tests statistiques sont nécessaires pour déterminer s'il y a des variations significatives entre la gamme de mesures effectuées sur l'échantillon et l'incertitude de la méthode de mesure utilisée. A cette fin, chaque échantillon a été compté trois fois; le temps de comptage a été ajusté lors de la

mesure de chaque échantillon pour avoir de bonnes statistiques de comptage (< 5%) (Tableau II.3).

Tableau 0.8 Temps et statistique de comptage des mesures par spectrométrie gamma

Echantillon	Surface pic	Statistique de comptage (%)	Temps de comptage (s)	Rapport d'embranchement γ	Efficacité ξ (%)	masse (g)	As (Bq/g)
E001	4970	3,53	3357	0,03	13,02	29,45	12,29
E002	11139	2,98	3771	0,03	13,02	32,85	20,38
E003	15134	2,28	4173	0,03	13,02	19,39	46,70

La méthode statistique **ANOVA** a été appliquée pour calculer la variance normalisée à l'intérieur d'un même échantillon et entre les groupes des différents échantillons. La méthode de calcul est présentée dans le tableau II.4. Notons que a_i est la somme des lectures du $i^{\text{ème}}$ groupe, u est la somme des carrés de toutes les mesures de tous les groupes, n est le nombre de mesures pour chaque échantillon ($n = 3$) et p est le nombre d'échantillons ($p = 3$). Les mesures d'activités des groupes d'échantillons sont présentées dans le tableau II.5.

Tableau 0.9 Calculs obtenus par l'emploi d'ANOVA

Source de variation	Somme des carrés (SS)	Degré de liberté (df)	Moyenne des carrés (MS)
Entre Groupes (BS)	$\sum_{i=1}^p \frac{a_i^2}{n} - \frac{(\sum_{i=1}^p a_i)^2}{np}$	$p-1$	$\frac{SS}{df} = MS_{BS}$
A l'intérieur des groupes (WS)	$u - \sum_{i=1}^p \frac{a_i^2}{n}$	$p(n-1)$	$\frac{SS}{df} = MS_{WS}$

MS : Mean Squares (Moyenne des carrés) ; SS : Sum squares (somme des carrés) ; BS: Between Sample (entre groupes d'échantillons) ; WS: Within Sample (à l'intérieur des groupes de l'échantillon).

La méthode ANOVA repose sur le calcul de la valeur F, qui est le rapport MS_{BS} / MS_{WS} . Cette valeur est utilisée pour estimer le niveau d'importance de ces variations. Par conséquent, la valeur F-critique, obtenue à partir de la distribution F et la valeur F calculée, peuvent être comparées pour savoir si l'échantillon peut être considéré comme homogène. Si la valeur F calculée est supérieure à la valeur F-critique le matériau n'est pas considéré comme homogène (R. BIAGINI, 1995).

Les trois échantillons prélevés ont été mesurés trois fois pour chaque échantillon et les activités spécifiques obtenues sont données dans le tableau II.5.

Tableau 0.10 Mesures d'activité spécifique pour le test ANOVA

Echantillon	A E001 (Bq/g)			A E002 (Bq/g)			A E003 (Bq/g)		
	Mesure 1	Mesure 2	Mesure 3	Mesure 1	Mesure 2	Mesure 3	Mesure 1	Mesure 2	Mesure 3
1	15,01	15,20	14,98	20,80	18,11	18,21	46,97	46,16	45,90
2	11,93	12,12	11,80	20,03	19,50	21,20	46,16	46,20	46,90
3	11,21	10,42	11,38	19,53	20,11	19,20	39,05	43,76	43,71

Le tableau II.6 présente les résultats du test d'homogénéité des échantillons NORM par l'analyse de la variance ou ANOVA.

Tableau 0.11 Test d'homogénéisation des échantillons NORM par analyse de la variance (ANOVA)

Echantillon	Source des variations	Somme des carrés	Degré de liberté	Moyenne des carrés	F	Valeur critique pour F
E001	Entre groupes	0,038	2	0,019	0,004	5,143
	A l'intérieur des groupes	27,684	6	4,614		
E002	Entre groupes	1,200	2	0,600	0,477	5,143
	A l'intérieur des groupes	7,555	6	1,259		
E003	Entre groupes	3,816	2	1,908	0,242	5,143
	A l'intérieur des groupes	47,243	6	7,874		

D'après le tableau II.6, les valeurs calculées de F sont inférieures aux valeurs critiques de F. Par conséquent, nous pouvons considérer que les échantillons sont homogènes du point de vue de l'activité spécifique du Ra-226.

II.3. Caractérisation chimique des NORM

II.3.1. Fluorescence des Rayons X (FRX)

Les compositions chimiques des NORM, avant et après traitement, ont été obtenues à l'aide de la spectrométrie de fluorescence des rayons X avec un appareil PHILIPS Analytical.

II.3.2. Principe de la FRX

C'est une technique d'analyse élémentaire non-destructive de l'échantillon. Elle est utilisée pour l'analyse de la composition chimique des matériaux minéraux. Le principe repose sur une technique d'analyse qui comprend deux parties :

- Une source d'excitation qui provoque l'émission d'un spectre de rayons X caractéristique de la composition de l'objet ;

- Un détecteur et un analyseur de rayonnement pour identifier les raies composant le spectre. Le système à dispersion angulaire est composé d'un goniomètre muni au centre d'un cristal analyseur et sur sa circonférence d'un détecteur mobile. Le rayonnement de fluorescence X collimaté en un faisceau de rayons parallèles tombe sur le cristal analyseur. Celui-ci diffracte ces rayonnements selon des angles liés à la longueur d'onde de chaque

raie par la loi de Bragg

$$n \lambda = 2d \sin \theta \quad (\text{II.6})$$

Où : λ = longueur d'onde en angströms, d = distance réticulaire en angströms et θ = angle de diffraction ou de réflexion en degrés.

II.4. Traitement chimique des NORM

Tous les produits chimiques et réactifs utilisés dans cette étude sont pour la plupart d'une grande pureté p ($p > 97\%$). Les solutions utilisées ont été préparées en utilisant de l'eau distillée, tandis que leur acidité a été ajustée à l'aide d'un pH-mètre avec une précision de $\pm 0,05$.

Les caractéristiques des différents produits chimiques utilisés dans les deux procédures de traitement des boues NORM sont données dans le tableau II.7.

Tableau 0.12 Caractéristiques des produits chimiques utilisés dans les deux procédures de lixiviations

Solution	Masse molaire (g/mol)	p (%)	masse volumique (g/mL)	Concentration (mol/L)
Acide acétique	60,02	100	1,05	17,49
Acétate d'ammonium	77,08	97	1,17	14,72
Chlorhydrate d'hydroxylamine	69,50	98	1,67	23,55
Citrate de sodium	294,10	99	1,70	5,72
Acétate de sodium	82,03	99	1,53	18,47
Chlorure de magnésium	203,31	99	2,16	10,52
Nitrate d'ammonium	80,04	99	1,72	21,27
Acide nitrique	63,01	69	1,42	15,55
Acide chlorhydrique	36,46	37	1,19	12,08
Acide fluorhydrique	20,01	40	1,13	22,59

II.4.1. Protocole du traitement séquentiel des NORM

Le traitement séquentiel a été réalisé en utilisant différentes solutions chimiques. Il permet d'extraire sélectivement différentes classes d'espèces de radium présents dans les déchets à radioactivité naturelle renforcée, comme les espèces hydrosolubles, échangeables, les carbonates, les espèces oxydables organiques réductibles, etc.

L'extraction est évaluée à partir de la concentration du radium trouvée dans les filtrats. Cette dernière évaluation est réalisée en utilisant la spectrométrie gamma.

II.4.1.1. Description de l'expérience de traitement séquentiel des NORM

La lixiviation séquentielle de la teneur en radium dans les NORM est basée sur l'extraction individuelle de chaque espèce de radium présente dans les déchets. Les expériences de

traitement ont été réalisées en quatre étapes (Agence Internationale de l'Energie Atomique AIEA (d), 1999), (E.M. EL AFIFI, 2009) et (TESSIER, et al., 1979), sous agitation continue pendant un temps suffisant et à une température appropriée en fonction de l'étape correspondante (Tableau II.8).

Pour faciliter les mesures et pouvoir les interpréter, nous avons choisi l'échantillon de boue NORM présentant l'activité spécifique la plus élevée (42 Bq/g), c'est-à-dire l'échantillon le plus contaminé ayant une activité spécifique dépassant la limite d'exemption en Ra-226 et qui est de 10 Bq/g (Décret présidentiel n° 05-117, 2005). Nous avons d'abord mesuré l'activité spécifique avant traitement de l'échantillon E003, de géométrie identique au standard solide.

De chaque échantillon NORM, nous avons pris une masse de 3 g de boue pour le traitement. Après chaque étape, le résidu et la solution sont centrifugés pendant 10 min à 3600 trs/min. Les filtrats obtenus sont analysés par spectrométrie gamma, pour déterminer l'activité en Ra-226 après lixiviation.

Plusieurs auteurs ont utilisé la méthode d'extraction séquentielle développée par Tessier et al. (TESSIER, et al., 1979). Cette méthode, permet de distinguer quatre catégories d'espèces de radium (Tableau II.8):

- a) Le radium échangeable est extrait sous agitation continue à température ambiante pendant 1 h, avec 24 mL d'une solution de chlorure de magnésium (1 M), à pH 7.
- b) Le radium lié aux carbonates est extrait du résidu de l'étape (a) sous agitation continue pendant 5 h à température ambiante, avec 24 mL d'acétate de sodium (1 M), ajusté à pH 5.0 avec de l'acide acétique concentré. Après 2 heures d'extraction, on réajuste le pH à 5.0 avec de l'acide acétique.
- c) Le radium lié aux oxydes de fer et de manganèse est libéré par agitation du résidu de l'étape (b) avec 60 mL d'un mélange d'hydroxylamine (0,04 M) et d'acide chlorhydrique et d'acide acétique à 25% (vol. /vol.). L'opération est réalisée pendant 6 h à la température de 96 ± 3 °C.
- d) Le radium lié à la matière organique est libéré après extraction à partir du résidu de l'étape précédente, à l'aide d'une solution acide de peroxyde d'hydrogène [9 mL d'acide nitrique (0,02 M) et 15 mL de peroxyde à 30% ajustée à pH égal à 2 avec de l'acide nitrique]. Le mélange ainsi obtenu est chauffé jusqu'à 85 ± 2 °C et maintenu à cette température pendant 2 heures. Un second volume de 9 mL de peroxyde est ajouté et le mélange obtenu est agité pendant 3 heures à 85 ± 2 °C. Après

refroidissement, un volume de 15 mL de nitrate d'ammonium (3,2 M) avec de l'acide nitrique à 20% (vol./vol.) est ajouté. Le mélange est ensuite dilué en complétant à 60 mL avec de l'eau distillée avant de procéder à une agitation pendant 30 min (Agence Internationale de l'Energie Atomique AIEA (d), 1999).

Tableau 0.13 Traitement séquentiel des déchets NORM

Etape	Espèce de Ra	Solution lixivante	Concentration (mol/L)	Volume (mL)	Temps d'agitation (h)	Température (°C)	pH
a	Echangeable	MgCl ₂	1	24	1	25	7
b	Lié aux carbonates	CH ₃ COONa	1	24	5	25	5
c	Lié aux oxydes de Fe-Mg	NH ₂ OH.HCl CH ₃ COOH	0,04 25%	60	6	96	-
d	Lié à la matière organique	HNO ₃	0,02	9	2	85	2
		H ₂ O ₂	30 %	24			
		NH ₄ NO ₃ HNO ₃	3,2 20%	15	0,5	25	-
		H ₂ O	-	60			

La méthode de traitement séquentiel a servi essentiellement pour la spéciation des espèces de radium présentes dans les échantillons de boue NORM.

II.4.2. Protocole du traitement par lixiviation acide des NORM

L'objectif de cette expérience est d'étudier un certain nombre de variables de lixiviation, afin de déterminer les plus critiques pour l'extraction du radium. De ce fait, la diminution du taux de radioactivité et le volume des déchets en seront réduits.

II.4.2.1. Description de la lixiviation acide

Les essais de lixiviation acide sont effectués en batch pour déterminer les conditions d'extraction du radium. La lixiviation, du latin *lixivium* (lessive), désigne une technique de lessivage de produits solides par un solvant approprié, de façon à en extraire les parties solubles. Elle consiste à mettre en contact l'échantillon et la solution lixivante, dans notre cas, les solutions lixiviantes sont des acides minéraux.

Le but essentiel de cette étude est de déterminer les paramètres optimaux de la lixiviation du radium, afin de récupérer le maximum de radium.

Dans un premier temps, nous avons utilisé deux acides minéraux pour la première étape de lixiviation. Par la suite, on a fait varier le nombre de lavages, ainsi que la concentration des acides. Le choix des paramètres optimaux est basé sur le rendement de la lixiviation, la réaction chimique la plus stable (sans effets secondaires) et aussi sur la rentabilité financière.

Après avoir sélectionné le type d'acide et sa concentration, nous avons entamé l'optimisation d'autres paramètres, à savoir : le rapport solide/liquide et le temps de contact pour chaque acide. Le choix des paramètres optimaux est basé sur les critères de rentabilité financière et sur le taux d'extraction maximal.

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les protocoles suivis pour la préparation et le traitement des échantillons des déchets NORM.

L'échantillonnage a été effectué au niveau d'un champ pétrolier, en différents points de plusieurs installations, afin de garantir une bonne représentativité de l'échantillon. Par la suite, un séchage et un broyage des échantillons ont été effectués, ainsi qu'un test d'homogénéité en utilisant l'analyse de la variance (ANOVA).

Les mesures de l'activité du radium ont été faites de façon non destructive en utilisant une chaîne de spectrométrie gamma. L'acquisition des données a été effectuée par un analyseur multi canal (MCA) en utilisant un logiciel de traitement Génie 2000 (CANBERRA France, 2010).

Deux traitements ont été appliqués dans cette étude. Le premier est le traitement séquentiel qui a été réalisé en quatre étapes successives. La lixiviation séquentielle de la teneur en radium dans les NORM est basée sur l'extraction individuelle de chaque espèce de radium présente dans les déchets. Le second traitement est la lixiviation acide du radium.

L'objectif du présent travail est d'étudier un certain nombre de variables de lixiviation pour déterminer les plus critiques pour l'extraction du radium. De ce fait, le taux de radioactivité et le volume final des déchets sera réduit.

III. Résultats et discussions

Introduction

Ce chapitre est consacré aux résultats obtenus lors de cette étude, portant sur :

- l'analyse de plusieurs échantillons, issus de différentes installations d'un champ pétrolier situé à Hassi Messaoud.
- le traitement séquentiel des déchets NORM qui a été effectué dans le but de connaître la spéciation du radium présent dans ces déchets.
- et enfin, l'étude paramétrique de la lixiviation acide qui a été menée afin d'optimiser les paramètres d'influence en vue de réduire le taux de radioactivité par une extraction maximale du radium.

III.1. Analyses des échantillons NORM

III.1.1. Caractérisation chimique des NORM

Une mesure de la fluorescence par rayon X (FRX) a été effectuée. La mesure a pour but d'examiner la composition chimique des échantillons, avant et après traitement. Les échantillons ont été pastillés pour éviter leurs dispersions et prévenir ainsi une éventuelle contamination de l'appareil. Les résultats de la mesure sont présentés dans le tableau ci dessous (Tableau III.1).

L'analyse par fluorescence RX a révélé que les échantillons sont composés essentiellement de carbone, ce qui s'explique par la probable présence de matière organique.

On note également, la présence du baryum (Ba), strontium (Sr), calcium (Ca) et du radium (Ra) qui ont les mêmes caractéristiques chimiques, ceci peut démontrer la coprécipitation du Ra avec le Ba, Sr et Ca sous formes de dépôts de sulfate tels que BaSO_4 , SrSO_4 et de dépôts sous forme de carbonate tel que le CaCO_3 .

De plus, nous remarquons après traitement, une baisse significative de métaux lourds. Le traitement acide a également permis la dissolution et donc, la lixiviation des métaux lourds contenus dans les échantillons NORM.

Tableau 0.14 Résultats de l'analyse par fluorescence RX des échantillons bruts et traités

	Concentration (%)					
Echantillon	E001		E002		E003	
Elément	Avant traitement	Après traitement	Avant traitement	Après traitement	Avant traitement	Après traitement
C	75,545	68,337	64,583	50,542	59,468	50,793
Ba	4,383	1,014	7,22	2,202	4,049	2,639
Ca	0,469	0,051	0,287	0,074	0,143	0,063
Sr	0,229	0,008	0,565	0,068	0,424	0,015
Ra	0,015	0,002	0,062	0,022	0,015	0,005
O	6,841	17,992	17,621	34,950	24,666	-
Na	0,311	0,067	0,152	0,086	0,104	0,086
Mg	0,069	0,037	0,056	-	0,073	0,054
Al	0,349	0,671	0,187	0,610	0,401	0,338
Si	4,577	9,447	1,041	6,178	1,137	2,388
P	0,008	-	0,081	0,013	0,07	-
S	1,413	0,92	2,046	2,947	1,571	1,724
Cl	0,411	0,045	0,427	0,066	0,114	0,057
K	0,198	0,114	0,154	0,153	0,12	0,097
Mn	0,069	0,02	0,045	-	0,062	0,026
Fe	3,18	1,102	2,63	1,204	7,061	7,555
Zn	0,147	0,012	0,476	0,244	0,113	0,039
Hg	0,011	0,004	0,026	0,013	0,025	-
Pb	1,759	0,038	2,267	0,627	0,062	0,441

III.1.2. Caractérisation radiologique des NORM

Les spectres obtenus de la mesure par spectrométrie gamma des échantillons de déchets NORM sont présentés dans les figures ci-dessous. Les spectres représentent le nombre de coup détectés par le Ge(HP) en fonction de l'énergie gamma déposée sur le détecteur (Figures III.1, III.2 et III.3).

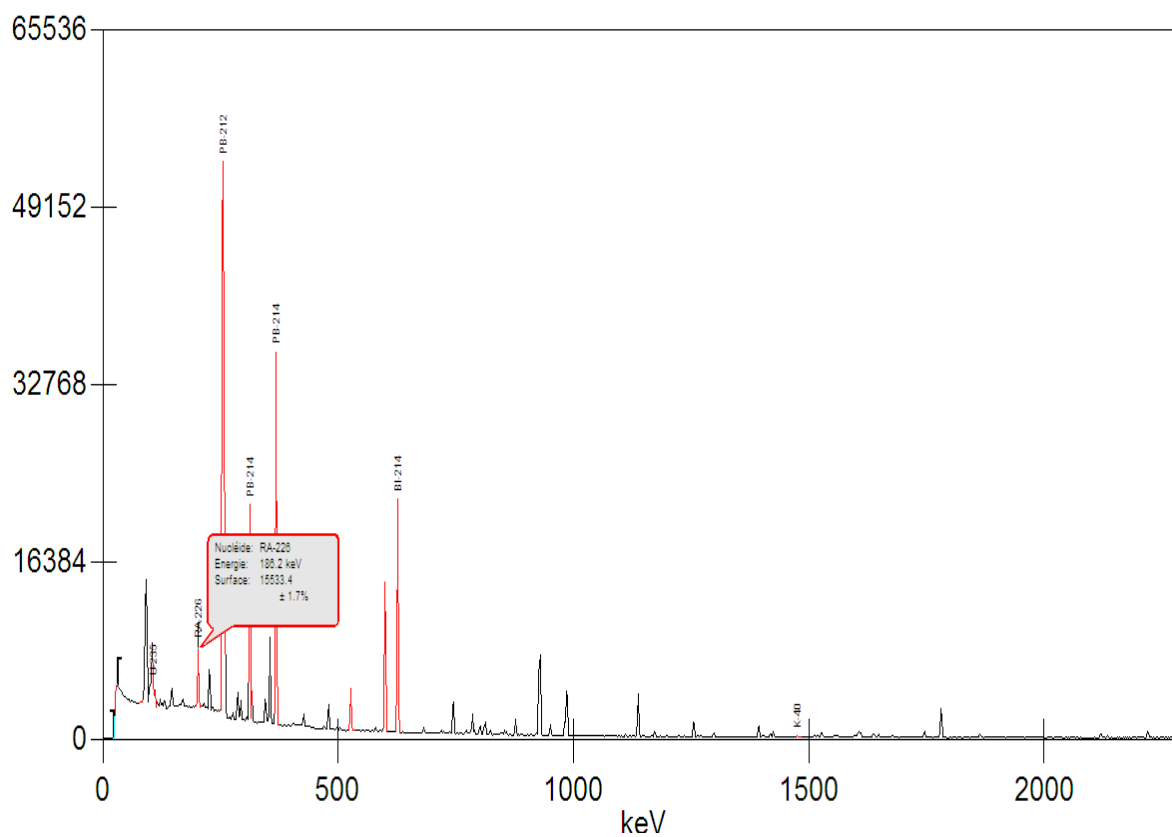


Figure 0.8 Spectre gamma de la mesure de l'échantillon E001

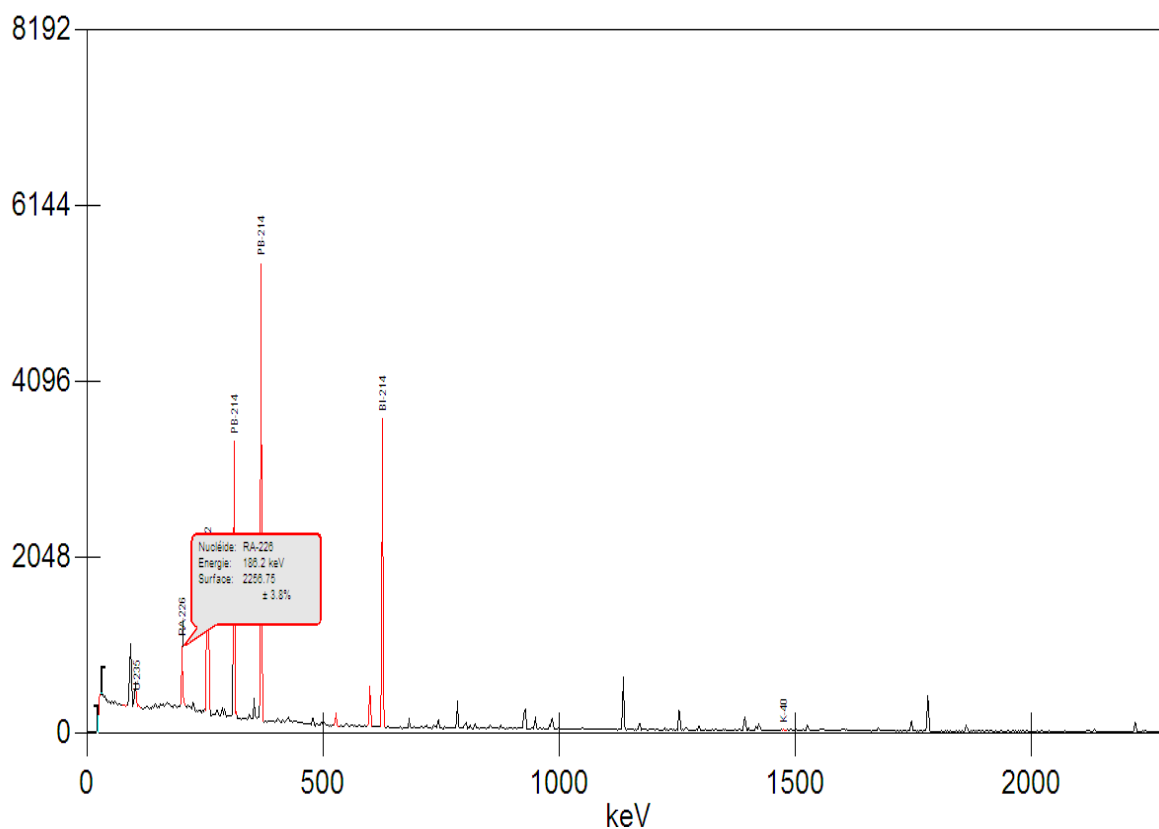


Figure 0.9. Spectre gamma de la mesure de l'échantillon E002

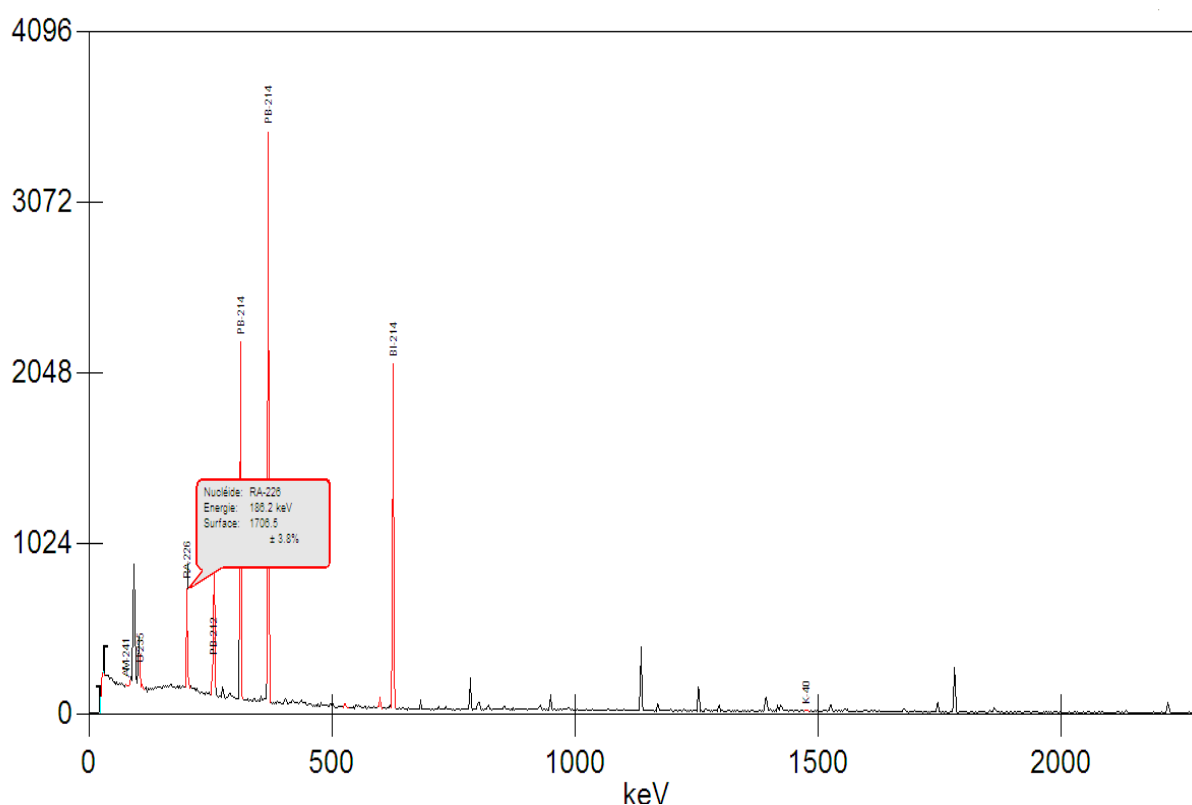


Figure 0.10. Spectre gamma de la mesure de l'échantillon E003

Le dépouillement des spectres pour l'analyse qualitative et quantitative des différents éléments radioactifs présents dans les échantillons est donné dans le tableau III.2.

Tableau 0.15 Dépouillement des spectres de spectrométrie gamma

E (keV)	Elément	A (Bq)	As (Bq/g)		
			E001	E002	E003
186,4	Ra-226	329,5	10,4	18,1	43,7
238,6	Pb-212	408,3	12,9	7,4	-
351,5	Pb-214	379,1	12,0	23,0	42,1
609,5	Bi-214	358,0	11,3	22,4	38,0

Les éléments radioactifs présents sont essentiellement le Ra-226 et le Ra-228 et leurs produits de désintégration (Pb-212, Pb-214 et Bi-214).

III.1.2.1. Répartition granulométrique de l'activité du radium dans les NORM

Le séchage des échantillons NORM bruts a permis le tamisage de ces derniers. Le but de ce tamisage est de voir la répartition granulométrique de la radioactivité afin de soustraire la fraction ayant un taux de radioactivité faible, dans le but de réduire le volume des déchets NORM.

Par mesure de radioprotection, le tamisage s'est fait manuellement et sous hotte appropriée, afin d'éviter tout risque de dispersion des poussières générées par l'action de tamisage.

Les mesures de la radioactivité pour différentes granulométries de trois échantillons provenant de différentes installations du champ pétrolier, montre qu'il y a une répartition plus ou moins homogène de la radioactivité (Figure III.4.). A l'exception de l'installation 14V204 (E003), où l'activité en Ra-226 se trouve plus concentrée dans la fraction la plus fine (<100 µm), à 500 µm et dans la fraction la plus grossière (1400 µm).

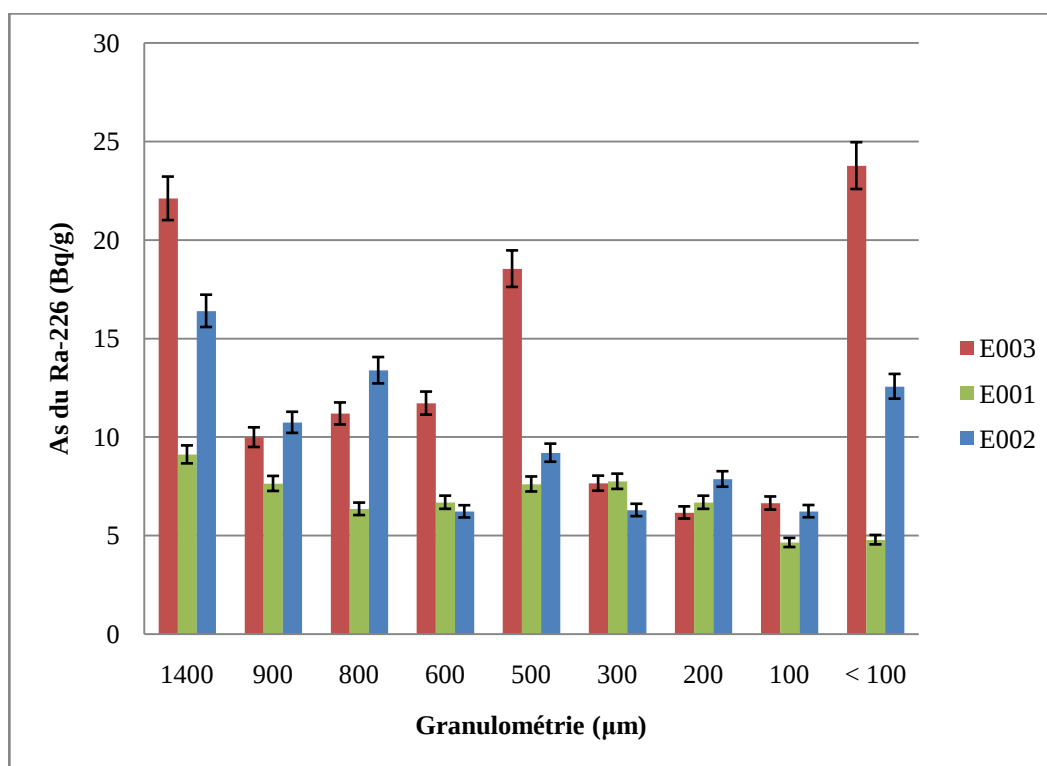


Figure 0.11 Répartition granulométrique de la radioactivité des échantillons NORM

La répartition de la contamination dans le domaine du pétrole ne se produit pas comme un processus de retombées, mais par entrainement de l'eau de production contenant du radium soluble et insoluble et par les changements de pression et de température, favorisant ainsi la formation de dépôts solides radioactifs (dépôts et Boues) (Agence Internationale de l'Energie Atomique AIEA (a), 2003), (Agence Internationale de l'Energie Atomique AIEA

(b), 2014), (Agence Internationale de l'Energie Atomique AIEA (c), 2012) et (Agence Internationale de l'Energie Atomique AIEA (d), 1999). Par conséquent, aucune fraction granulométrique ne peut être retranchée à des fins de réduction de volume.

III.1.2.2. Distribution de l'activité du radium dans différentes installations

La distribution de l'activité spécifique du radium (Ra-226) contenue dans les boues NORM de différentes installations du champ pétrolier, sont présentés dans la figure III.5. Les chiffres montrent que dans 30 % des installations, leurs déchets NORM présentent une activité spécifique en Ra-226 supérieure à la limite d'exemption 10 Bq/g (Décret présidentiel n° 05-117, 2005), avec un maximum, 4 fois supérieur à cette valeur. Les installations concernées sont essentiellement les séparateurs. Environ 35% des installations ont des déchets NORM avec des activités spécifiques entre 8 et 5 Bq/g et le reste des installations, c'est-à-dire, environ 35 % présentent des déchets NORM avec des activités spécifiques négligeables qui sont inférieures à 3 Bq/g.

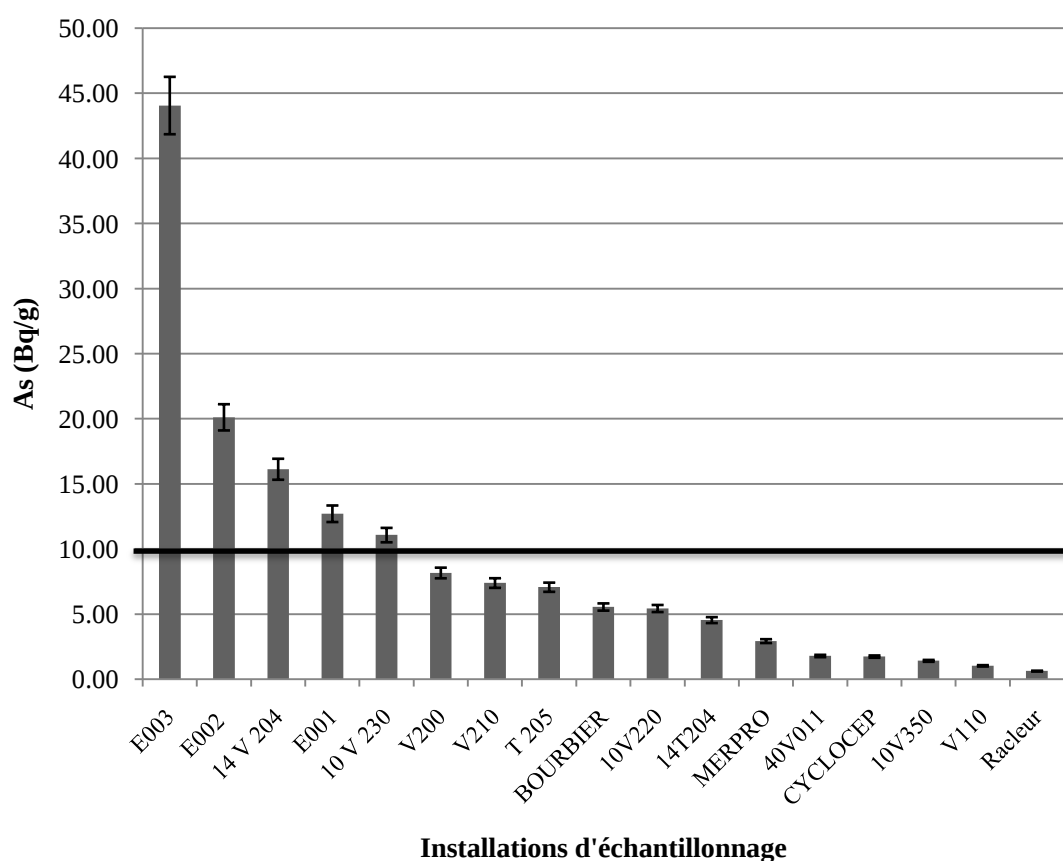


Figure 0.12 Activités spécifiques d'échantillons NORM de différentes installations du champ pétrolier

III.2. Traitement séquentiel

Ce traitement est effectué afin de voir quelles sont les espèces de radiums présentes dans les boues NORM. Les concentrations d'activité du radium 226 ont été mesurées grâce à la spectrométrie gamma. Les niveaux d'activité moyens du Ra-226 sont présentés dans le tableau III.3.

Tableau 0.16 Activité spécifiques des échantillons NORM

Echantillons	E001	E002	E003	Limite d'exemption
Activité (Bq/g)	42,17 ± 5,21	19,04 ± 1,96	12,71 ± 2,99	10

Les valeurs trouvées montrent l'existence de taux élevés dépassant parfois quatre fois la valeur d'exemption du Ra-226 (10Bq/g), cas de l'échantillon E003. De plus, les déchets NORM sont stockés en très grandes quantités, ce qui engendre des concentrations de très haute activité. Ce constat montre le danger potentiellement encouru par les travailleurs qui activent dans les zones d'existence des NORM. Enfin, il ne faut pas oublier le risque environnemental d'autant plus que les déchets NORM en Algérie se trouvent principalement dans les champs pétroliers situés dans le Sahara, or cette région est connue pour ses conditions climatiques et géologiques difficiles favorisant la dispersion des déchets NORM.

III.2.1 Taux de lixiviation du traitement séquentiel

Le taux de lixiviation de toute la procédure est le rapport entre l'activité ayant été extraite de l'échantillon et l'activité initialement présente dans l'échantillon. Le taux de lixiviation est calculé selon l'équation (III.1) :

$$L (\%) = \frac{A_1}{A_0} \times 100 \quad [III.1]$$

Où L est le taux de lixiviation du Ra-226, A_0 est l'activité des échantillons de boues NORM avant traitement et A_1 est l'activité du filtrat extraite après le traitement séquentiel.

Dans ce premier traitement, le déchet à radioactivité naturelle renforcée le plus contaminé a été traité séquentiellement, en quatre étapes de lixiviation, en utilisant différentes solutions chimiques. Les résultats sont présentés dans le tableau III.4.

Tableau 0.17 Taux de lixiviation du traitement séquentiel de l'échantillon E003

Etape	Espèce de Ra extrait	Taux de lixiviation (%)
a	Echangeable	3,74 ± 0,67
b	Lié aux carbonates	2,85 ± 0,51
c	Lié aux oxydes Fe-Mg	6,52 ± 0,17
d	Lié à la mat. Organique	4,52 ± 0,81
Taux de lixiviation total (%)		17,63 ± 3,17

Les valeurs de lixiviation du traitement séquentiel, montrent, que nous avons obtenu un faible taux de lixiviation. Très peu d'études ont été réalisées sur la lixiviation des déchets NORM de l'industrie pétrolière, parmi elles, les travaux d'El Afifi et coll. 2009 qui se sont intéressés au traitement de déchets NORM issues de l'industrie du pétrole en Egypte. Nous avons appliqué un traitement séquentiel identique à celui d'El Afifi et coll. 2009 et nous avons comparé nos résultats.

Nous constatons une nette différence entre les résultats obtenus, d'une part l'activité spécifique des échantillons sont nettement différentes (Tableau III.5), ainsi, ils ont traité un échantillon présentant une activité spécifique du Ra-226 de **12 Bq/g** qui se rapproche de la valeur d'exemption du Ra-226, avec un taux de lixiviation de ce dernier de **91%**, tandis que nous avons traité un échantillon ayant une activité spécifique en Ra-226 de **42,2 Bq/g** avec un taux de lixiviation de **17%** (Tableau III.5).

D'autre part, du point de vu minéralogique et chimique, les déchets NORM sont intimement liés à la nature géologique du gisement de pétrole dont ils proviennent. Par conséquent, Il est difficile de comparer entre les différentes études car il ne peut y avoir de similitude, ni dans leurs compositions, ni dans leurs taux de radioactivité (The International Association of Oil & Gas Producers, 2008). Le radium se trouvant sous forme de carbonates et de sulfates reste très peu soluble. En effet, les sulfates de radium sont insolubles dans les acides dilués, mais, ils sont solubles dans l'acide sulfurique concentré, et les carbonates de radium sont, quant à eux, solubles dans les acides dilués (United States Atomic Energy , 1964).

Tableau 0.18 Comparaison des taux de lixiviation du traitement séquentiel

Référence	As initiale (Bq/g)	Etape a (échangeable)	Etape b (carbonates)	Etape c (oxydes Fe-Mg)	Etape d (mat. organique)	Taux de lixiviation (%)
Notre étude	42,2 ± 5,2	3,7	2,9	6,5	4,5	17,6
El Afifi et al. (2009)	12,0 ± 1,7	10,6	12,8	14,2	53,3	91

Nous pouvons noter que l'espèce ayant le plus grand pourcentage de lixiviation est l'espèce de radium lié aux oxydes de fer et de manganèse, contrairement aux résultats d'El Afifi et coll. (2009), où l'espèce prédominante est l'espèce de radium lié à la matière organique. La lixiviation du Ra-226 est croissante dans cet ordre :

Ra lié aux oxyde de Fe-Mg > Ra lié à la matière organique > Ra échangeable > Ra lié aux carbonates.

Ce classement peut être expliqué par le fait que les acides solubilisent le fer et le magnésium qui libèrent plus de radium.

Le traitement séquentiel a été appliqué par plusieurs auteurs pour des échantillons de l'environnement, ayant des concentrations de radium à l'état de trace, ce qui pourrait expliquer le faible taux de lixiviation obtenu. A titre d'exemple, nous pouvons citer les travaux de Cooper et coll. (M.B. COOPER, 1981) qui ont utilisé cette méthode de traitement pour des échantillons de sédiments de cours d'eau.

Le plus gros problème avec les procédures d'extraction chimique est la faible sélectivité d'extraction pour plusieurs raisons:

- Souvent, les extractants ne libèrent pas quantitativement la forme (s) attendue (s), mais attaquent également les formes indésirables d'un élément trace;
- L'extraction peut changer de façon significative l'abondance ou les propriétés des composants non extraits de l'échantillon;
- L'élément extrait peut être ré-adsorbé sur le résidu;
- L'ensemble des phénomènes mentionnés ci-dessus dépend de la durée de l'extraction, le ratio solide / agent d'extraction, la composition de la matière solide et la nature de l'élément extrait. (Agence Internationale de l'Energie Atomique AIEA (d), 1999)

Il a été démontré que l'ordre des extractants pourrait affecter de façon significative l'extractibilité du radium (United States Atomic Energy , 1964). D'autres auteurs

s'accordent à dire qu'il n'y a pas de relation claire pouvant être établie entre, la composition de l'agent d'extraction, sa capacité de lixiviation et la liaison radium (A.I. TASKAEV, 1976).

III.3. Traitement par lixiviation acide

Nous avons appliqué le protocole de lixiviation acide à l'échantillon de boue NORM E003, qui présente la plus importante activité spécifique.

III.3.1. Optimisation des paramètres de lixiviation

L'optimisation des paramètres de lixiviation porte sur le choix de l'acide, le nombre de lavages, la concentration de l'acide, le rapport solide/liquide, ainsi que le temps de contact.

III.3.1.1. Type d'acide et nombre de lavage successifs

La lixiviation acide comporte deux étapes successives. Lors de la première, six (06) échantillons de boue NORM d'une masse de 3 g chacun sont préparés. Les trois premiers subissent une attaque avec 30 mL d'acide concentré, un avec HF, le second avec HNO₃ et le dernier avec HCl. Après une heure de mise en contact, les trois (03) mélanges sont centrifugés et les trois (03) précipités sont récupérés. Les trois autres échantillons subissent la même lixiviation mais trois fois de suite.

Lors de la deuxième étape de lixiviation, l'ensemble des six résidus subissent une première attaque avec 50 mL d'acide sulfurique concentré (H₂SO₄) durant 1 heure de mise en contact, suivie d'une centrifugation et récupération des résidus et des filtrats. Cette opération de lixiviation est reprise encore 2 fois pour chaque résidu. On obtient ainsi six (06) résidus et dix huit (18) filtrats.

A la fin de ces deux étapes de lixiviation, les dix huit (18) filtrats sont analysés par spectrométrie gamma. L'activité totale du Ra-226 lixivié, c.-à-d. la somme des activités retrouvées dans trois filtrats (03) correspondant à chaque échantillon, est rapportée dans le tableau III.6.

Tableau 0.19 Activité du Ra-226 lixivié avec un ou trois lavages d'acides concentrés

	Activité lixiviée (Bq)		
	Avec HF	Avec HNO ₃	Avec HCl
Echantillon ayant subi une lixiviation	13,39	15,85	15,37
Echantillon ayant subi trois lixiviations	14,22	10,83	8,73

Nous remarquons que l'activité spécifique du radium 226 lixivié, en utilisant un seul lavage à l'acide nitrique et chlorhydrique sont proches (Tableau III.6). Néanmoins, l'activité la plus importante qui a été lixiviée est celle utilisant l'acide nitrique avec un seul lavage suivi de trois lavages à l'acide sulfurique.

III.3.1.2. Concentration de l'acide

Dans cette étape, nous avons effectué une variation de la concentration de l'acide nitrique ainsi que celle de l'acide chlorhydrique. Pour dissocier entre les deux acides, nous avons donc fait varier leurs concentration de 15,55 M à 0,49 M pour l'acide nitrique et de 12,08 M jusqu'à 0,38 M pour l'acide chlorhydrique (Figure III.6 et Figure III.7).

Une masse de 3 g d'échantillon de boue NORM, a subi une première lixiviation à l'acide sous agitation pour chaque concentration. Après une heure de mise en contact, le lixiviat a été filtré puis centrifugé. Le résidu de la première lixiviation est attaqué une seconde fois par H₂SO₄ pendant une heure sous agitation. Par la suite, une centrifugation a été effectuée pour séparer la partie solide et liquide. Cette opération est reprise encore 2 fois pour chaque résidu et les filtrats sont analysés par spectrométrie gamma.

Nous constatons que l'activité du Ra-226 lixivié est plus importante pour les faibles concentrations d'acide (Figure III.6 et III.7). Le radium présent sous forme de carbonates est extrait avec les acides à faible concentration (United States Atomic Energy , 1964).

Nous remarquons également qu'au niveau de la première lixiviation, l'acide nitrique montre une meilleure extraction du radium, en effectuant trois lavages successifs en comparaison avec l'acide chlorhydrique. Les activités du Ra-226 lixivié obtenues sont de 24,58 Bq et 23,13 Bq respectivement pour une concentration de 1,94 M d'acide nitrique et de 1,51 M d'acide chlorhydrique.

Cependant, il n'est pas économiquement intéressant de faire trois lavages à l'acide nitrique, car cela n'augmenterait l'extraction du Ra-226 que de 16 % (Figure III.6).

Par conséquent, les paramètres optimaux sont : un seul lavage à l'acide nitrique avec une concentration de **1,94 mol/l** pour la première lixiviation, suivie de trois lavages successifs à l'acide sulfurique pour la seconde lixiviation.

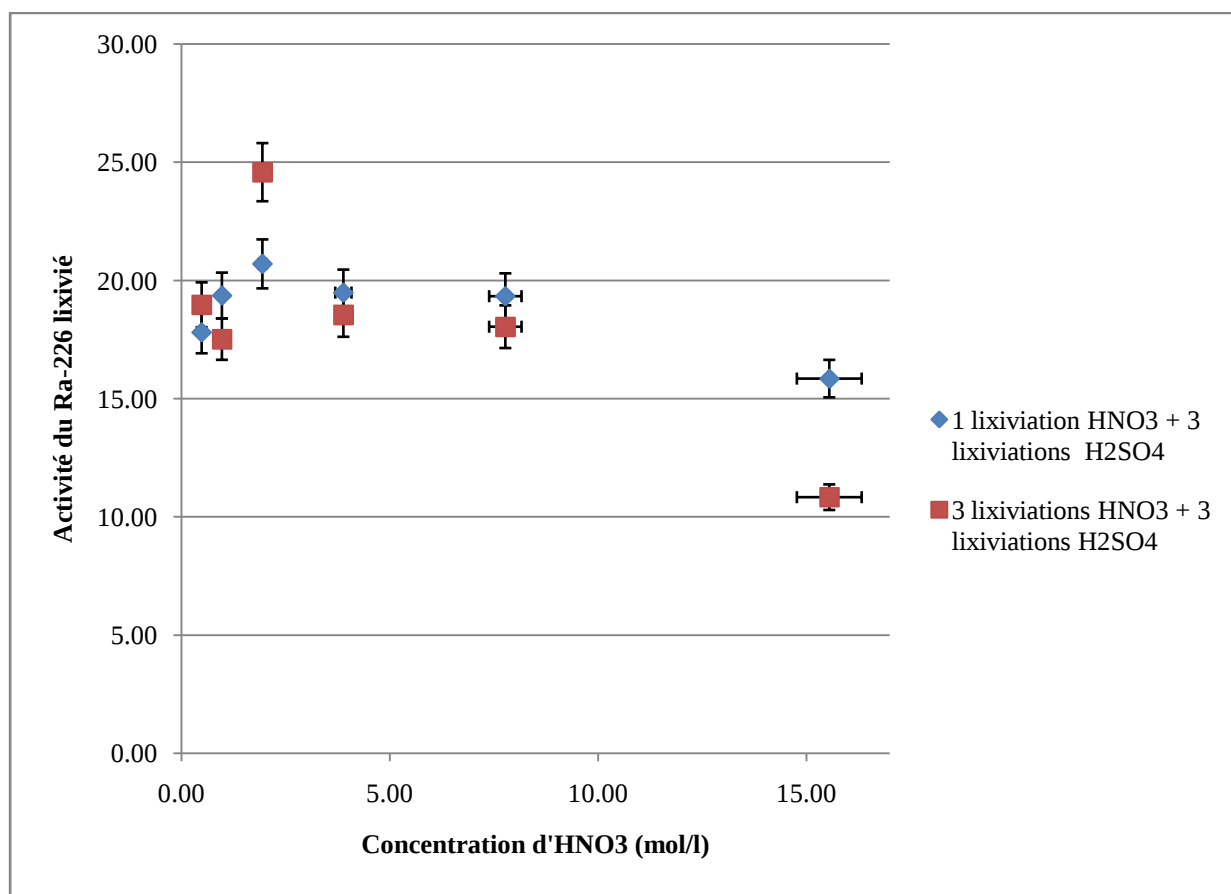


Figure 0.13 Activité du Ra-226 lixivié en fonction de la concentration de HNO3 pour différents lavages successifs

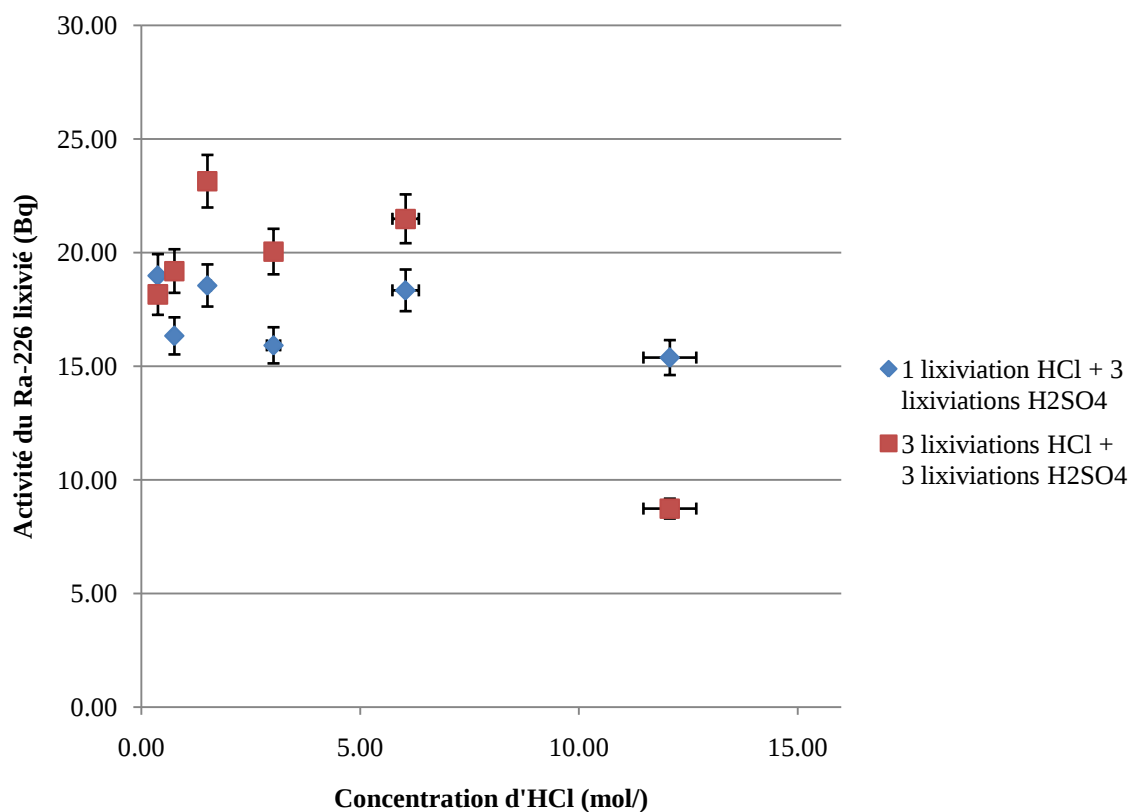


Figure 0.14 Activité du Ra-226 lixivié en fonction de la concentration de HCl pour différents lavages successifs

III.3.1.3. Rapport solide/liquide

III.3.1.3.1. Rapport solide/liquide optimal de la première lixiviation à l'acide nitrique

Après avoir fixé le type d'acide et le nombre de lavages successifs, nous poursuivons l'optimisation des paramètres de lixiviation du Ra-226 avec la variation du rapport solide/liquide.

Pour 3 g d'échantillon de boue NORM, nous avons fait varier le volume d'acide nitrique, de façon à avoir une variation du rapport solide/ liquide compris entre 1/3 jusqu'à 1/33. Pour chaque rapport solide/liquide, nous avons effectué une première lixiviation avec l'acide nitrique de concentration 1,9 M, suivi de 3 lixiviations successives avec un volume de 50 mL d'acide sulfurique, à chaque lixiviation.

Après chaque lixiviation, une centrifugation est effectuée pour séparer la partie solide et liquide. Les lixiviats sont ensuite analysés par spectrométrie gamma.

Les résultats de la variation du rapport solide/liquide pour la première lixiviation à l'acide nitrique, montre qu'il y a une faible variation de l'activité du Ra-226 extraite en fonction du volume d'acide nitrique utilisé. Néanmoins, le rapport optimal, donnant la plus

importante activité extraite du Ra-226 est obtenu pour le rapport solide/liquide **1/16**, pour lequel l'activité extraite du Ra-226 est de **19,61 Bq** (Figure III.8).

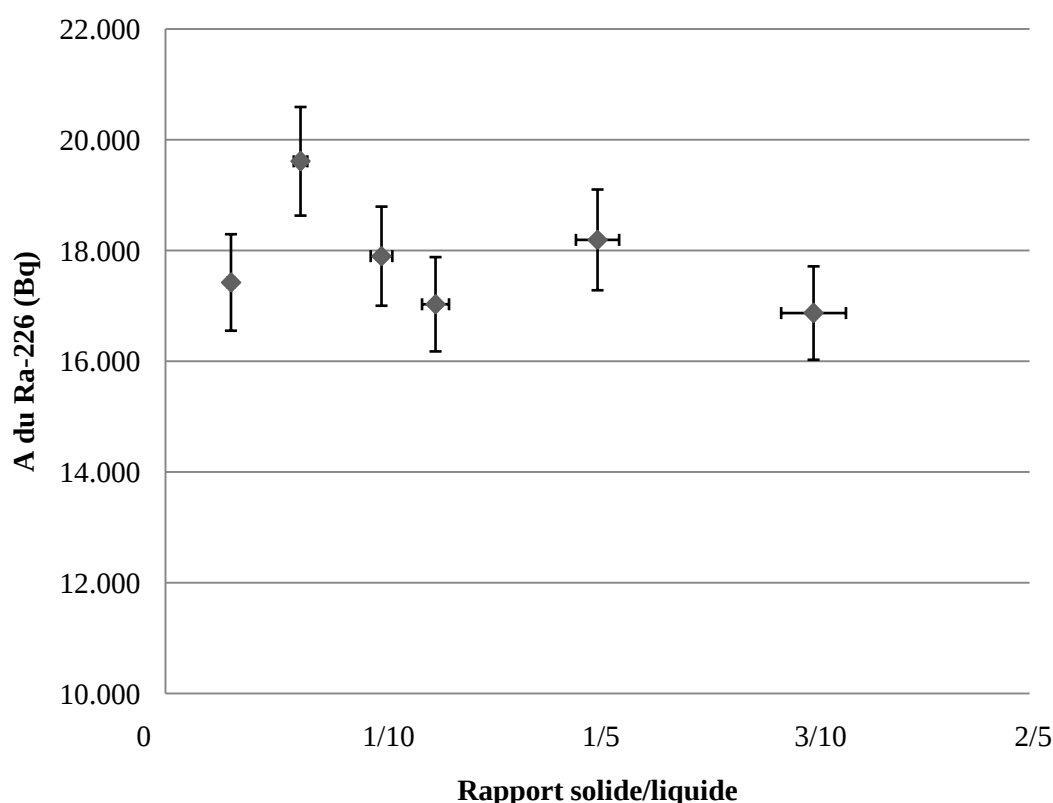


Figure 0.15 Activité du Ra-226 lixivié en fonction du rapport solide/liquide de l'acide nitrique

III.3.1.3.1. Rapport solide/liquide optimal de la deuxième lixiviation à l'acide sulfurique

Pour 3 g d'échantillon de boue NORM, nous fixons un volume d'acide nitrique de 48 mL (rapport S/L = 1/16) et on fait varier le volume d'acide sulfurique, de façon à avoir une variation du rapport solide/ liquide de 1/3 jusqu'à un rapport de 1/50.

Pour chaque rapport, une centrifugation a été effectuée pour séparer la partie solide du liquide. Les résultats de la variation du rapport solide/liquide pour l'acide sulfurique (Figure III.9) montrent, qu'il y a une très forte variation de l'activité du Ra-226 extraite en fonction du volume d'acide sulfurique utilisé. Cela veut dire que ce paramètre influe de manière significative sur le taux de lixiviation du Ra-226.

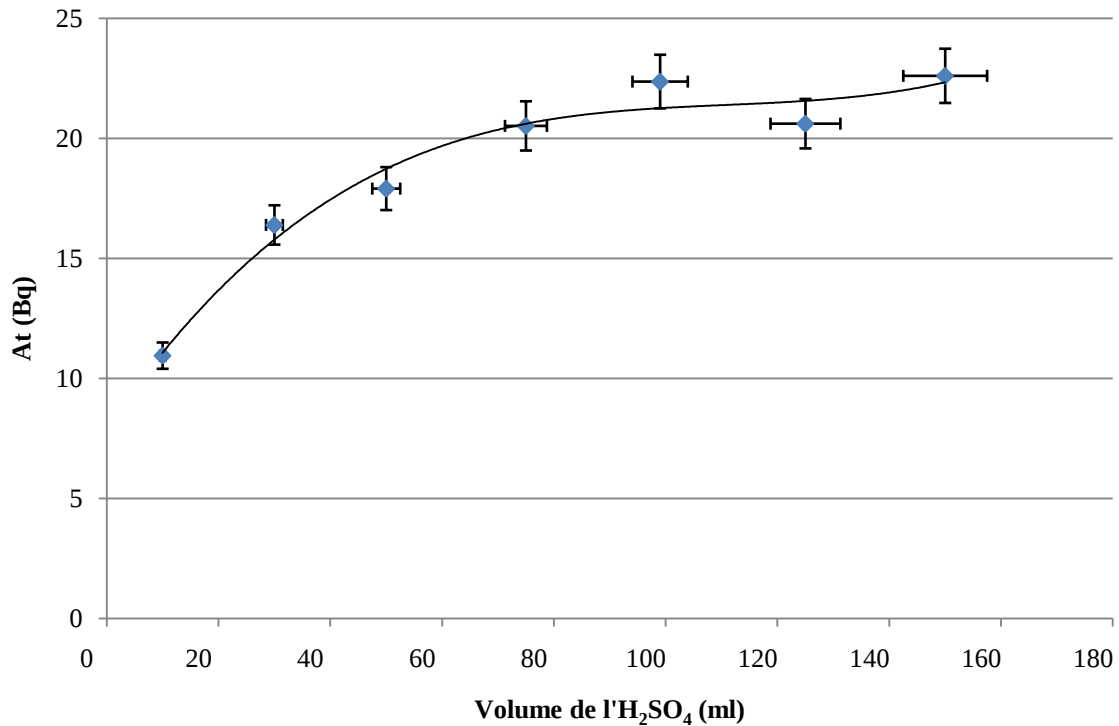


Figure 0.16 Activité du Ra-226 lixivié en fonction du volume de l'acide sulfurique

Nous remarquons qu'au-delà de 75 mL (rapport S/L = 1/25), l'activité du Ra-226 extrait tend à devenir constante. En effet, au-delà de ce rapport, une légère augmentation de la lixiviation du Ra-226 (6 Bq) est constatée. Par conséquent, le rapport optimal choisi, donnant la plus importante activité extraite du Ra-226 est le rapport solide/liquide **1/25**, pour lequel l'activité extraite du Ra-226 est de **20,51 Bq** (Figure III.9).

III.3.1.4. Temps de contact

Une fois que les rapports solide/liquide de l'acide nitrique et de l'acide sulfurique ainsi que leurs concentrations ont été déterminés, nous avons procédé à l'évaluation du temps de contact optimal de l'acide sulfurique.

Le même protocole est adopté pour cette étape, en faisant varier le temps de contact. Il consiste à faire une seule (01) lixiviation avec l'acide nitrique de concentration 1,9 M, avec un rapport solide/liquide de 1/16 pendant 1h, suivi de trois (03) lixiviations successives avec l'acide sulfurique, avec un rapport solide/liquide de 1/25.

Pour chaque lavage avec l'acide sulfurique, nous avons varié le temps de contact de 20 minutes jusqu'à 24 h. Pour chaque lavage à l'acide sulfurique, une centrifugation a été effectuée pour séparer la partie solide et liquide et les lixiviats sont analysés par spectrométrie gamma.

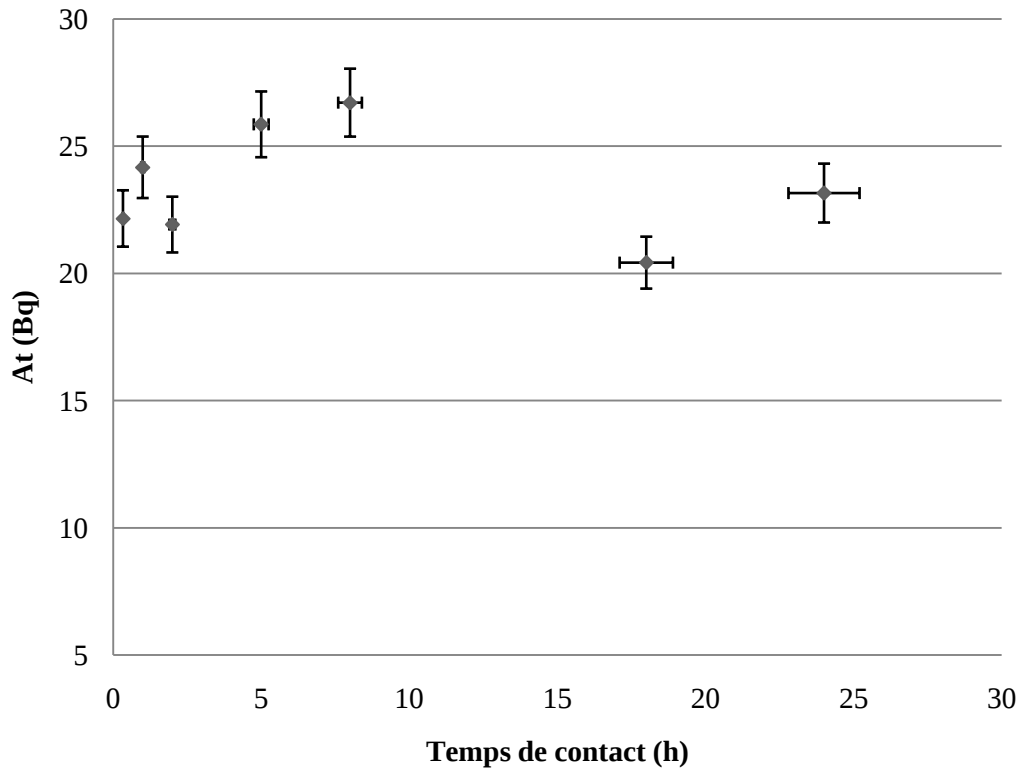


Figure 0.17 Cinétique de lixiviation du Ra-226

Les résultats de la variation du temps de contact de la boue NORM avec l'acide sulfurique, montre qu'il y a une augmentation de la lixiviation du Ra-226 extraite à mesure qu'on augmente le temps de contact, jusqu'à un certain moment où l'on voit une diminution de l'activité extraite (Figure III.10). En effet, nous remarquons qu'au-delà de 8h, l'extraction du radium diminue. D'après la figure III.10, nous remarquons qu'il y a une très faible variation de la lixiviation du Ra-226 pour les temps de contact de 5h et 8h, cette variation est de 1 Bq. Par conséquent et pour des raisons pratiques, le temps de contact optimal choisi est de **5h**. Avec ce temps de contact, nous avons pu extraire une activité de **25,86 Bq** de Ra-226.

III.3.2. Application des paramètres optimaux de la lixiviation acide aux déchets NORM

Après détermination des valeurs optimales pour les différents paramètres du protocole de lixiviation, nous les avons appliqué pour la lixiviation du Ra-226, sur trois types de boue NORM, issus de différentes installations d'un champ pétrolier. Pour chaque installation, trois échantillons ont été traités par lixiviation acide. Au total, neufs (09) échantillons ont été lixiviés suivant le protocole optimisé adopté (Photo III.1). Nous avons donc effectué, dans un premier temps, une seule (01) lixiviation à l'acide nitrique de concentration de 1,9

M, avec un rapport solide liquide de 1/16 pendant 1h de contact, suivi de trois (03) lixiviations successives avec l'acide sulfurique avec un rapport solide/liquide de 1/25 pendant 5h de temps de contact pour chaque lavage.

Après chaque lixiviation, une centrifugation a été effectuée pour séparer la partie solide et liquide et les lixiviats sont analysés par spectrométrie gamma.



Photo 0.8 Dispositif expérimental de lixiviation

Les taux de lixiviation moyens des échantillons E001, E002 et E003 sont respectivement de $68,26 \pm 3,41 \%$, $69,82 \pm 3,49 \%$ et de $84,54 \pm 4,23 \%$ (Figure III.11).

La procédure de lixiviation appliquée a permis de réduire considérablement le taux de radioactivité des échantillons de boue NORM. En effet, la lixiviation acide des déchets NORM a permis d'éliminer plus de 80 % du Ra-226, ce qui donne un résidu dont l'activité spécifique moyenne n'est que de 3,5 Bq/g en Ra-226, cette valeur est inférieure à la limite d'exemption (10 Bq/g).

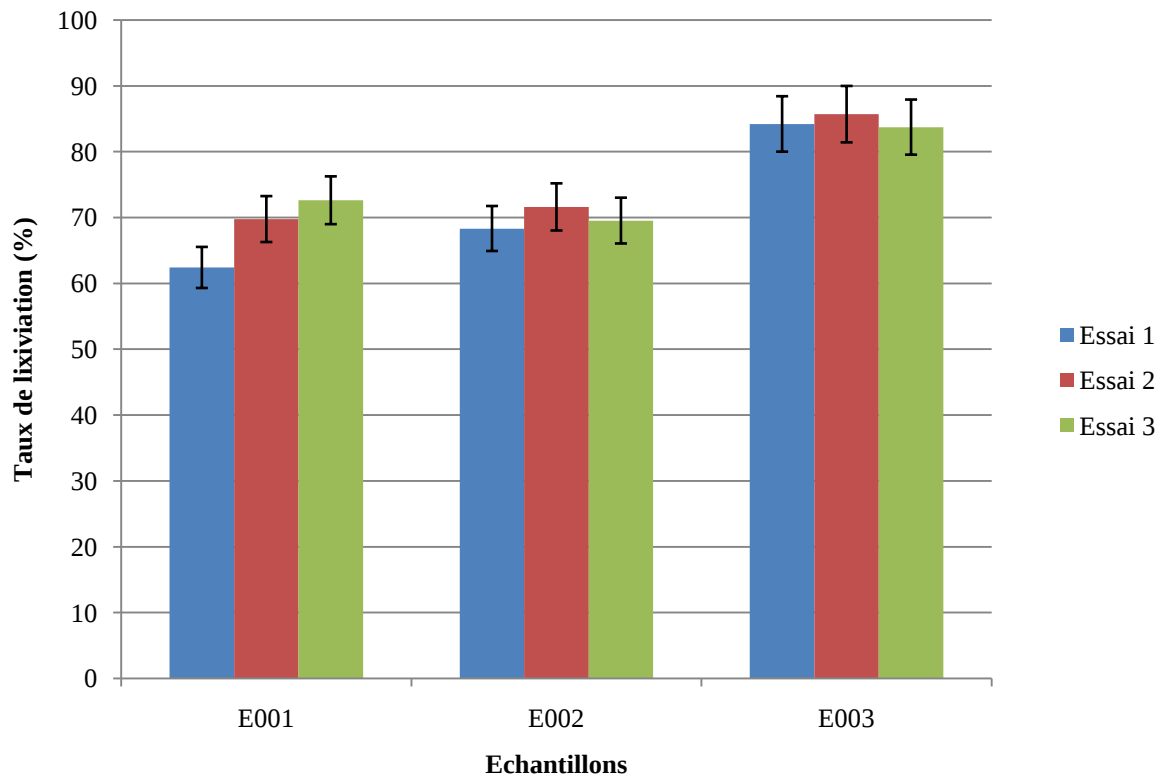


Figure 0.18 Taux d'extraction du Ra-226 par lixiviation acide

L'élimination des déchets contaminés NORM est un problème majeur qui n'a pas trouvé de solution totalement satisfaisante. De plus, lors de la mise en œuvre de nos expériences, il n'a pas été évident de trouver des travaux récents sur la lixiviation du Ra-226, issus des déchets à radioactivité renforcée des installations pétrolières.

Un résumé des essais de lixiviation sur différents échantillons NORM est présenté sur le tableau III.7. En comparant nos résultats avec ceux obtenus par Khalifa et al. (S.M. KHALIFA, 1998) (55.2%), qui ont appliqué une lixiviation acide sur des sédiments NORM d'installations pétrolières nous avons obtenu une meilleure lixiviation du Ra-226 en utilisant l'acide sulfurique (1M).

Tableau 0.20 Comparaison des taux de lixiviations pour différentes procédures

Solution de lixiviation	Type d'échantillon	L %	Référence
HNO ₃ (1,9 M), S/L = 1/16, 1h + H ₂ SO ₄ concentré, S/L = 1/25, t _c = 5h	Sédiments et boue NORM d'installations pétrolières	74,2	Notre étude
HNO ₃ (1 M)	Sédiments NORM d'installations pétrolières	41,2	(S.M. KHALIFA, 1998)
HCl (1 M)	Sédiments NORM d'installations pétrolières	44,3	(S.M. KHALIFA, 1998)
HClO ₄ (1 M)	Sédiments NORM d'installations pétrolières	40,8	(S.M. KHALIFA, 1998)
H ₂ SO ₄ (1 M)	Sédiments NORM d'installations pétrolières	55,2	(S.M. KHALIFA, 1998)
HNO ₃ (3 M) à 70°C, S/L = 1/2, t _c = 5 h	Résidus de traitement de minerais d'uranium	52,0	(A. D. RYON, 1977)
HNO ₃ (3 M) à 70°C, S/L = 1/2, t _c = 5 h	Minerais d'uranium	76,0	(A. D. RYON, 1977)

III.4. Impact radiologique des NORM

III.4.1. Débits de dose autour des installations d'un champ pétrolier

III.4.1.1. Relevés radiologiques

Un contrôle radiologique a été effectué à l'extérieur et à l'intérieur du bac T-205 et de son dégazeur avant le début de l'opération, les valeurs obtenues sont mentionnées sur la figure III.12 :

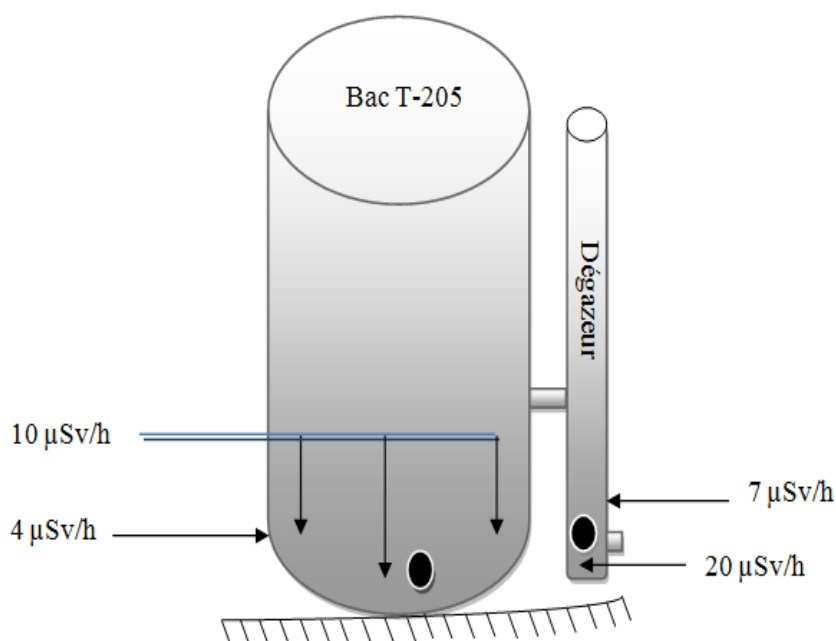


Figure 0.19 Débit de dose autours du back de stockage T-205 (A. NECHAF, 2013)

Les débits de dose mesurés autour du back de stockage T-205, montrent qu'il y a nécessité de faire une distribution du temps de séjours. En d'autres termes, chaque intervenant doit effectuer son travail en un minimum de temps, pendant lequel il ne doit pas dépasser la limite réglementaire pour le public qui est de 1 mSv/an, c'est-à-dire qu'il ne doit pas dépasser un débit de dose de 0,5 $\mu\text{Sv/h}$ (Décret présidentiel n° 05-117, 2005).

Les débits de dose mesurés autour du back de stockage rentrent dans la gamme des débits de dose présentés par HAMLAT et al. (2001) (Tableau III.8). Cependant, elles restent bien inférieures aux valeurs enregistrées par JONKERS et al (1997).

Tableau 0.21 Débits de dose de l'industrie pétrolière

Pays	Débit de dose ($\mu\text{Sv/h}$)	Référence
Algérie	4 - 20	Notre étude
Algérie	Bruit de fond - 100	(HAMLAT, 2001)
Royaume Uni	10 - 300	(HOLLAND, 1998)
USA	Plus de 300	(JONKERS, 1997)

III.4.1.2. Estimation de la dose reçue durant les opérations de décontamination

Les doses reçues par les intervenants ont été mesurées à l'aide des dosimètres actifs dont a été doté chaque intervenant. Les doses enregistrées n'ont révélé aucun dépassement des limites réglementaires pour le public (1 mSv/an) (Tableau III.9).

Tableau 0.22 Débit de dose mesuré pour chaque intervenant au cours de l'opération de décontamination du back T-205 (A. NECHAF, 2013)

Nature des travaux	Dose reçue/intervenant (μSv)
Nettoyage du bac (groupe 1, 3 personnes)	2
Nettoyage du bac (groupe 2, 3 personnes)	2
Nettoyage du bac (groupe 3, 3 personnes)	3
Nettoyage du bac (groupe 1, 3 personnes)	1
Nettoyage du bac (groupe 2, 3 personnes)	1
Nettoyage du dégazeur (groupe 3, 3 personnes)	3
Nettoyage de la citerne et décontamination des outils (tous les groupes)	3
Tri des déchets et assainissement de l'aire de travail (tous les groupes)	1

L'opération de décontamination a été réalisée par deux équipes composées de trois agents chacune. Les équipes se relayent toutes les 45 minutes (temps de séjour dans les deux espaces confinés). Ainsi, deux à trois rotations sont effectuées par jour.

Après l'opération de nettoyage du back de stockage, les sédiments collectés ainsi que les équipements de protection contaminés sont conditionnés dans des fûts métalliques. Le nombre total des fûts est de 13, avec une contenance de 220 L pour une quantité moyenne d'environ 100 kg chacun. L'opération à elle seule, a donc généré plus d'une tonne de déchets NORM. Le débit de dose au contact des fûts est de 6,55 $\mu\text{Sv/h}$ (A. NECHAF, 2013).

Grace à la répartition du temps d'exposition, les doses reçues par les intervenants pendant les 15 jours de travail sont en dessous des normes fixées par la réglementation. Les niveaux de contaminations relevés à la fin de l'opération sont en dessous des limites maximales admissibles. Néanmoins, il est important de respecter les mesures de radioprotection afin de réduire le risque d'exposition conformément au principe ALARA (voir annexe).

III.4.2. Simulation d'une contamination interne

III.4.2.2. Résultats de la simulation par AIDE

Nous avons simulé à l'aide du logiciel AIDE, deux cas de contamination, l'une par ingestion et l'autre par blessure. Etant donné que la procédure de décontamination fait en sorte d'humidifier les déchets NORM, il est peu probable d'avoir une contamination par inhalation. Ceci, justifie notre choix de mode de contamination par ingestion, par ailleurs, les conditions de travail peuvent entraîner des coupures occasionnelles, c'est pour cela qu'on a également choisi de faire une simulation de contamination par blessure.

On a donc simulé la contamination par ingestion et par blessure, d'un becquerel de Ra-226. Le radium n'existe pas à l'état pur, il se combine immédiatement et est toujours à l'équilibre avec ses descendants, mais pour des raisons pratiques et par manque de données sur l'activité de ses descendants, nous avons simplifié notre cas de contamination à la présence seule du Ra-226.

L'évolution de l'activité retenue dans différents organes est illustrée sur les figures III.13 et III.14 pour les deux cas de contamination considérés. Il est clair que l'activité incorporée dans l'organisme par la voie de blessure est beaucoup plus importante que celle incorporée par ingestion. La raison est que la contamination par plaie fait passer le Ra-226 directement dans la circulation sanguine, tandis que par ingestion, il y'a d'abord passage vers le système digestif pour ensuite passer vers le sang via l'absorption au niveau de l'intestin grêle. Après ingestion, 20% de l'activité ingérée de Ra-226 passe vers la circulation sanguine.

Les principaux organes cibles sont le squelette et le foie. En effet, le Ra-226 dont le comportement s'apparente à celui du calcium, se distribue dans tout l'organisme. Tandis que la majeure partie est éliminée dans les selles, une partie est retenue principalement dans le squelette, et à moindre degré dans le foie. La quantité retenue par l'os diminue très lentement avec le temps. Le Ra-226 est excrété par voie urinaire et fécale. La période biologique du radium dans l'organisme entier est de 900 jours et dans les os de 5,5 ans (P. BERARD, 2001).

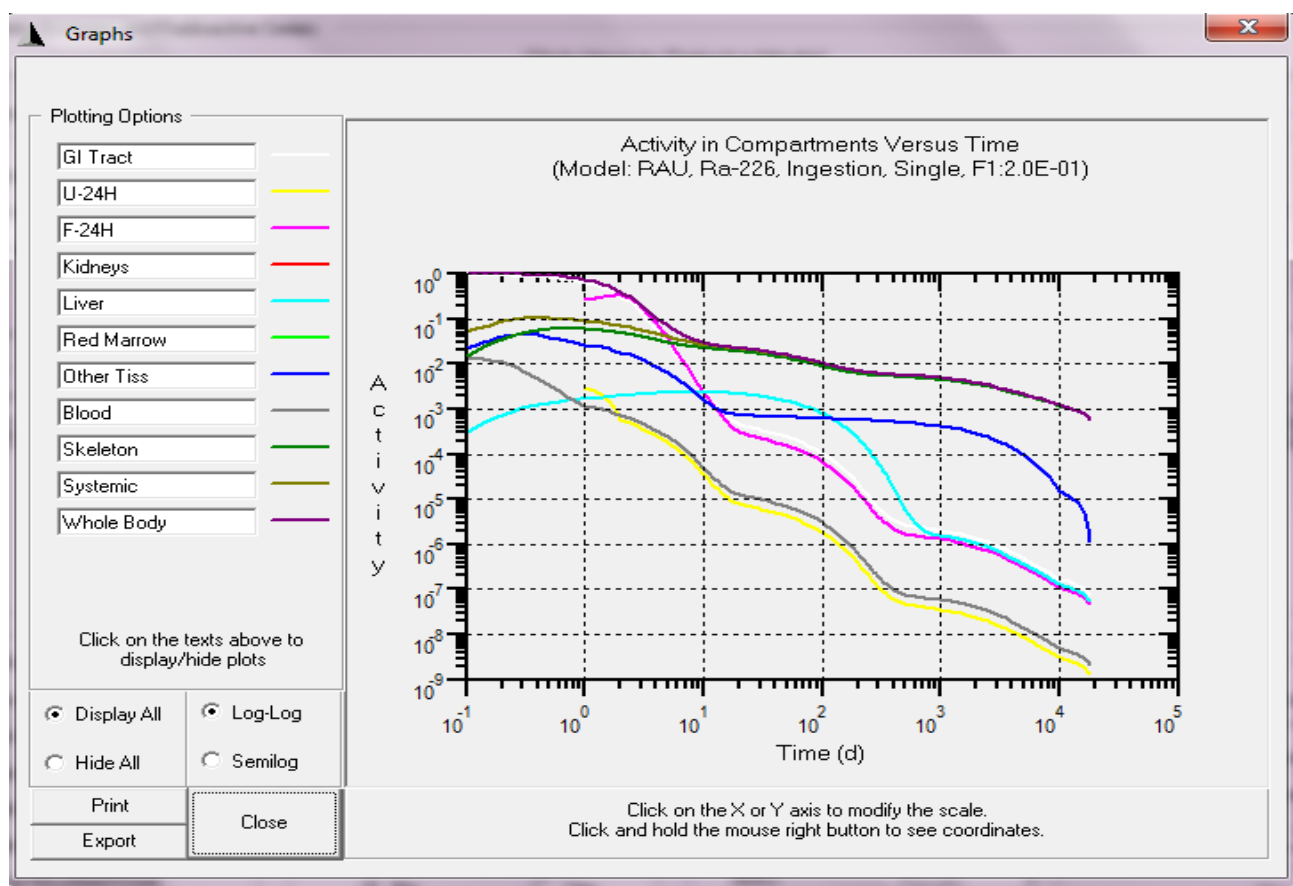


Figure 0.20 Activité retenue dans différents organes suite à l'ingestion d'1 Bq de Ra-226 (Logiciel AIDE, 2009)

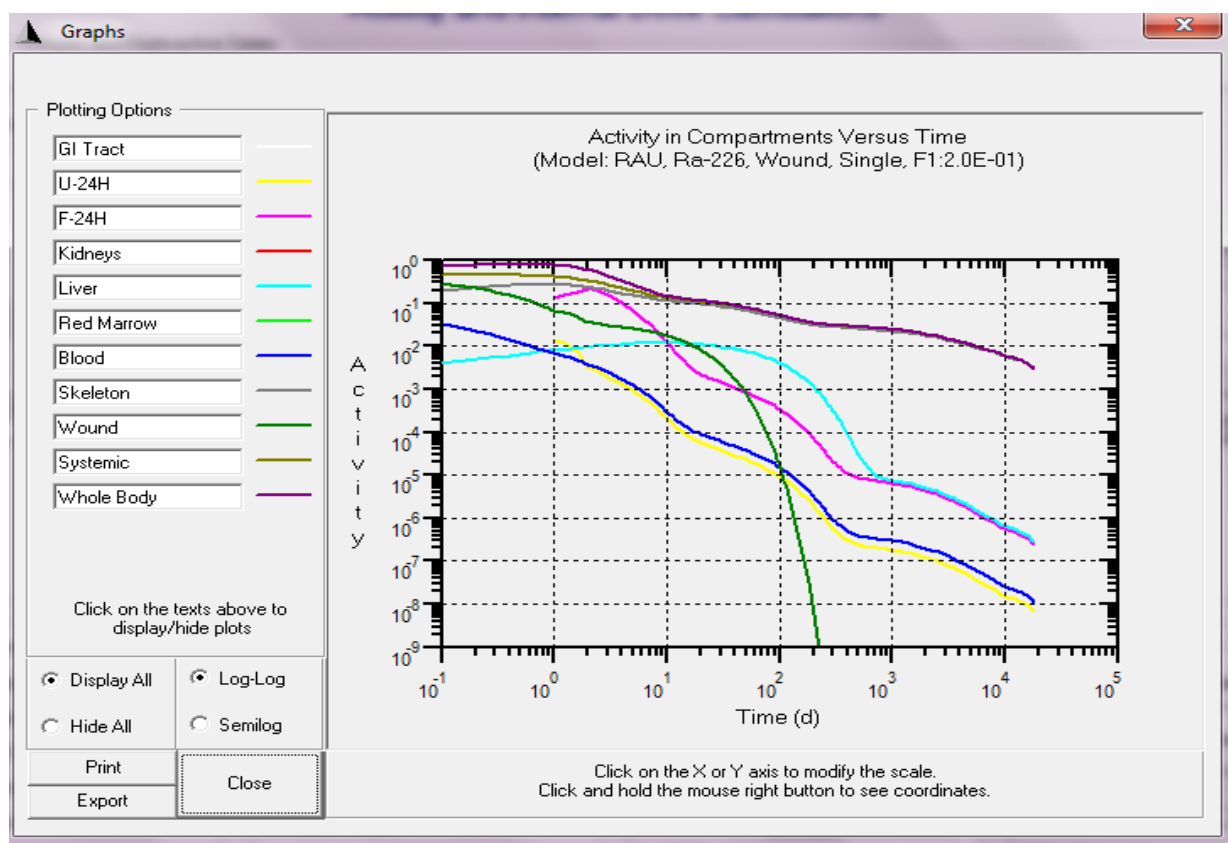


Figure 0.21 Activité retenue par différents organes suite à l'injection d'1 Bq de Ra-226 par plaie (Logiciel AIDE, 2009)

Compte tenu de la biocinétique du radium, les effets biologiques d'une contamination au Ra-226 sont des lésions radio-induites qui conduisent, essentiellement, à l'apparition de cancers osseux. Les cancers des sinus, observés après absorption de Ra-226, seraient liés à la diffusion du Rn-222 dans les cavités aériennes (Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire, 2014) et (P. BERARD, 2001).

Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les résultats des mesures de la radioactivité de plusieurs échantillons NORM. Il s'avère que plusieurs échantillons ont des activités spécifiques, qui dépassent la limite d'exemption du Ra-226, qui est de **10 Bq/g**. La concentration la plus élevée était de **44 Bq/g** en Ra-226.

Nous avons également présenté les résultats des deux protocoles de traitement des boues NORM. En effet, le premier est un traitement séquentiel, qui a donné un taux de lixiviation du Ra-226 de **17,63 %**. Il a permis d'extraire sélectivement différentes classes d'espèces de radium. le second est une lixiviation acide, qui a permis d'atteindre de taux d'élimination de plus de **80 %** du Ra-226.

Par la suite, nous avons présenté les mesures in situ du débit de dose autour des installations du champ pétrolier qui montrent que le risque d'exposition externe est potentiellement faible, à condition de respecter les mesures de radioprotection.

Enfin, nous avons simulé une contamination interne à l'aide du logiciel AIDE qui nous a également permis de suivre la biocinétique du Ra-226 ainsi que de voir les principaux organes cibles, qui sont le squelette et le foie.

CONCLUSION GENERALE

L'élimination des déchets contaminés NORM est un problème majeur qui n'a pas trouvé de solution totalement satisfaisante. Cette étude est une contribution pour réduire les volumes de déchets NORM en procédant à l'élimination des éléments radioactifs.

Nous avons effectué des mesures de la radioactivité de plusieurs échantillons, issus de différentes installations d'un champ pétrolier situé à Hassi Messaoud. Plusieurs échantillons ont des activités spécifiques qui dépassent la limite d'exemption du Ra-226 (**10 Bq/g**). La concentration la plus élevée était de **44 Bq/g** en Ra-226. Comme les quantités des déchets NORM s'accumulent sur le site de stockage, il est clair que le risque d'exposition aux NORM doit être géré de manière appropriée afin d'assurer la protection et la sécurité des personnes.

Pour répondre à cette problématique, notre contribution au traitement de ces déchets a débuté dans un premier temps, par un traitement séquentiel des NORM. Les résultats de ce traitement se sont avérés peu concluants, avec un faible pourcentage d'extraction du Ra-226 (**17,63%**). Néanmoins, ce dernier nous a permis d'extraire sélectivement différentes classes d'espèces de radium présentes dans les déchets à radioactivité naturelle renforcée, comme les espèces de radium liées aux oxydes de fer et de magnésium, à la matière organique, aux carbonates, etc. Dans notre cas, la plupart du radium lessivé appartient à l'espèce de Ra oxydable.

Par la suite, nous avons appliqué un deuxième traitement pour l'extraction de la radioactivité par lixiviation acide. Nous avons effectué ainsi une optimisation des paramètres de lixiviation. Ce procédé a permis de réduire considérablement le taux de radioactivité des échantillons de boue NORM. En effet, la lixiviation acide a permis d'éliminer plus de **80 %** du Ra-226, ce qui donne un résidu contenant des activités spécifiques avec une moyenne de 3,5 Bq/g en Ra-226, valeur inférieure à la limite d'exemption.

Une fois les activités déterminées expérimentalement, nous avons estimé l'impact radiologique que pourrait engendrer ce type de déchets sur les travailleurs exposés à ces NORM. En effet, des mesures de débit de dose autour des installations du champ pétrolier

a été faite in situ. Les valeurs obtenues montrent que le risque d'exposition externe est potentiellement faible, à condition de respecter les mesures de radioprotection.

Pour parachever nos travaux, nous avons simulé une contamination interne par des déchets NORM, et avons calculé les doses radioactives qui en découlent à l'aide du logiciel AIDE, qui est un logiciel de calcul d'activité incorporée et d'estimation de dose dûe à une contamination interne. Cette simulation a permis de suivre la biocinétique du Ra-226 et de voir les principaux organes cibles, qui sont le squelette et le foie. Nous avons également remarqué que la quantité du Ra-226 retenue par l'os diminue très lentement avec le temps.

Cette étude n'est qu'une humble contribution au traitement des déchets à radioactivité naturelle concentrée NORM. Les perspectives qui en découlent pourraient être axées sur :

- Une caractérisation plus profonde de ces déchets.
- Une étude paramétrique du traitement séquentiel en optimisant les paramètres de lixiviation du Ra-226, notamment la concentration des solutions lixiviantes, en appliquant par exemple le plan d'expériences.
- Etendre le champ d'application à d'autres installations de forage ou de production.

BIBLIOGRAPHIE

A. D. RYON F. J. HURST, F.G. SEELEY.1977. Nitric Acid Leaching of Radium and Other Significant Radionuclides from Uranium Ores and Tailings [Rapport]. - [s.l.] : ; OAK Ridge National Laboratory, Union Carbide Corporation for the Energy Research And Development Administration.

ABDELLAH, W.M. et AL-MASRI, M.S. 2014.*Treatment of norm contaminated soil from the oilfields.* Cairo, Egypt : ELSEVIER Journal of Environmental Radioactivity, 2014.

ALMAYAH, B.A., TAJUDDIN, A.A. et JAAFAR, M.S. 2012.*Effect of the natural radioactivity concentrations and $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ disequilibrium on cancer diseases in Penang, Malaysia.* Penang, Malaysia : ELSEVIER Radiation Physics and Chemistry, 2012.

AL-TRABULSY, H.A., KHATER, A.E.M. et HABBANI, F.I. 2011.*Radioactivity levels and radiological hazard indices at the Saudi coastline of the Gulf of Aqaba.* Riyadh. Saudi Arabia : Radiation Physics and Chemistry, 2011.

AMEKUDZIE, A., et al. 2011.*Natural Radioactivity Concentrations and Dose Assessment in Shore Sediments along the Coast of Greater Accra, Ghana.* Accra, Ghana. : World Applied Sciences Journal, 2011.

AMMERICH, M.; FROT, P.; GAMBINI, D-J; GAURON, C.; HERBELET, G.; LAHAYE, T.; MOUREAUX, P.; PIHET, P. et RANNOU, A. 2014.*Radioprotection, radionucléide Ra-226.* Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN). Paris : s.n.

AMRANIA, D. et TAHTAT, M. 2001.*Natural radioactivity in Algerian building materials.* s.l. : ELSEVIER Applied Radiation and Isotopes.

A. NECHAF; H. HASNAOUI et M. LEKEDDOUR. 2013.Mesures de débits de dose [Rapport] : Rapport de mission CRNA.

A.I. TASKAEV V.A. OVCHENKOV, R.M. ALEXAKHIN et SHUKTOMOVA.1976. Effect of pH and liquid phase cation composition on the extraction of Ra-226 from soils [Rapport]. - Pochvovedenie No. 12.

A.M.H.VAN DER VEEN T. LINSINGER, J. PAUWELS. 2001. Uncertainty calculations in the certification of reference materials (2-Homogeneity study) [Livre]. - Accred. Qual. Assur. 6, 26 .

A.TESSIER P.G.C. CAMPBELL, M. BISSON. 1979. Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals [Livre]. - Anal. Chem. 51.

Agence Internationale de l'Energie Atomique AIEA (a). 2003. Radiation Protection and the Management of Radioactive Waste in the Oil and Gas Industry [Rapport] : Safety Reports Series . - No.34.

Agence Internationale de l'Energie Atomique AIEA (b). 2014. The environmental behaviour of radium [Rapport] : Technical reports series. - Vol.1. - N° 476.

Agence Internationale de l'Energie Atomique AIEA (c). 2012. Assessing the need for radiation protection measures in work involving minerals and raw materials [Rapport] : Safety Report . - No. 49.

Agence Internationale de l'Energie Atomique AIEA (d). 1999. The environmental behaviour of radium [Rapport] : Technical reports series . - N° 310.

BAEZA, A., et al. 2011. *Analysis of the different source terms of natural radionuclides in a river affected by NORM (Naturally Occurring Radioactive Materials) activities.* Cáceres, Spain : ELSEVIER Chemosphere.

BIRD, A.F. ; ROSSER, H.R.; WORRALL, M.E. et MOUSLY, K.A. 2002. *Technologically enhanced naturally occurring radioactive material associated with sulfate reducing bacteria biofilms in a large seawater injection system.* Society of Petroleum Engineers. Kuala Lumpur : s.n..

BORN, H.-J. 1936. *Verwandte Salze und Erdöl, Kali 30.* pp. 41– 45.

BRAMKI, A. 2011. *Mesure par spectrométrie gamma de la radioactivité naturelle présente dans des échantillons de l'environnement.* Constantine : s.n.. Mémoire de magister.

BROWNE, E. et FIRESTONE, R. 1986. *Table of radioactive isotopes.* Wiley-Interscience Publication. s.l. : Shirley V Editor.

CANBERRA France. 2010. Logiciel de spectrométrie Manuel d'utilisation [Livre]. - Ref. / 80032_c.

CHEVALLIER, P. 2012.*Détection et mesure des rayonnements.* s.l. : TECHNIQUES DE L'INGÉNIEUR.

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.

Décret présidentiel n° 05-117. 2005.Mesures de protection contre les rayonnements ionisants [Article] // Journal officiel de la république algérienne. - 27.

DOYI, I.; KOFI ESSUMANG, D.; DAMPARE, S. et TETTEH GLOVER , E. 2016.*Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Materials (TENORM) in the Oil and Gas Industry:A Review.* Accra, Ghana : Reviews of Environmental Contamination and Toxicology. DOI 10.1007/398_2015_5005.
E.M. EL AFIFI N.S. AWWAD, M.A. HILAL. 2009.Sequential chemical treatment of radium species in TENORM waste sludge produced from oil and natural gas production [Livre].

EYLANDER, J.G.R; LANCÉE, P.; HARTOG, F.A.; JONKERS, G. et FRIGO, D.M. 1997.*Feasibility study: On-site decontamination of a Dutch E&P site, Radiological Problems with Natural Radioactivity in the Non-Nuclear Industry .* Amsterdam : s.n..

FAO, IAEA, ILO, OECD NUCLEAR ENERGY AGENCY, PAN AMERICAN HEALTH ORGANIZATION, WHO. 1996.*International Basic Safety Standards for Protection against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiation Sources.* IAEA. Vienna : s.n.. Safety Series. No. 115.

FIELDER, G.D. 1994.*Application and evaluation of scale dissolver treatments.* National Association of Corrosion Engineers. Baltimore : s.n.. 94.

FORD, W.G.F.; GADEKEN, L.L.; CALLAHAN, T.J. et JACKSON, D.1996.*Solvent removes downhole NORM-contaminated BaSO₄ scale.* Oil Gas Journal. pp. 65-68.

GESELL, T.F. 1975.*Occupational radiation exposure due to Rn-222 in natural gas and Natural gas products.* pp. 681-687.

G. JONKERS F.A. HARTOG, W.A.I. KNAEPEN, P.F.J. LANCEE. 1997.Characterization of NORM in the oil and gas production (E&P) industry [Livre]. -

Amsterdam : [s.n.]. - pp. 23–47 . - Proceedings of the International Symposium on Radiological Problems with Natural Radioactivity in the Non-Nuclear Industry.

HEN, J.; BRUNGER, A.; PETERSON, B.K.; YUAN, M.D. et RENWICK, J.P. 1995.*A novel scale inhibitor chemistry for downhole squeeze application in high water producing sea wells.* Society of Petroleum Engineers, Richardson.

HOLLAND B. 1998. Experience with operations involving NORM in the United Kingdom (UK) and some other regions. [Rapport] : Report of the RCA Expert Advisory Group Meeting to review and develop radiation protection guidance for naturally occurring radioactive materials in the oil and gas and other mineral extraction and processing industries. / Australian Nuclear Science and Technology Organisation, Lucas heights. - Sydney : [s.n.].

IAEA, INTERNATIONAL LABOUR OFFICE. 1999.*Occupational Radiation Protection.* Vienna : s.n.. Safety Standards Series . No. RS-G-1.1.

IBC Technical Services. 1997.*Solving Oil field Scaling* . London : s.n.. Proc. 3rd Int. Conf. Aberdeen.

ICRP (International Commission on Radiological Protection). 1983.*Radionuclide transformations, Energy and intensity of emissions.* s.l. : Oxford Pergamon Press. Publication. N° 38.

Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire. 2014. Radioprotection : radionucléides Radium-226 [Rapport].

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. 2012.*Personal Protective Equipment, Practical Radiation.* Vienna : s.n.. Technical Manual . No. 5.

J. BONNEMAINS Charlotte NITHART ,C. BOSSARD, M. POTTER, M. FORBES, C. ILIEV, M. WINSLOW, L. DEHAVEN.2005.La radioactivité naturelle technologiquement renforcée [Livre].- Association de protection de l'Homme et de l'environnement Robin des Bois.

KINSEY, R.R. 1997.*Capture Gamma Ray Spectroscopy and Related Topics.* The NUDAT/PCNUDAT program for nuclear data. Budapest : s.n.. Proc. 9th Int. Symp. .

KOLB, W.A. et WOJCIK, M. 1985.*Enhanced radioactivity due to natural oil and gas production and related radiological problems.* pp. 77–84.

LANDSBERGER, S., et al. 2013.*Determination of ^{226}Ra , ^{228}Ra and ^{210}Pb in NORM products from oil and gas exploration: Problems in activity underestimation due to the presence of metals and self-absorption of photons.* Austin, TX 78731, USA : ELSEVIER Journal of Environmental Radioactivity.

Logiciel AIDE. 2009. Activity And Internal Dose Estimates. Reference Manual Version 7.0 ; [Livre].

M.B. COOPER K.A. STANNEY, G.A. WILLIAMS. 1981. An Investigation of the Speciation of Radionuclides in Sediments and Soils [Rapport]. - Melbourne : Australian Radiation Laboratory. - Rep. ARL/TR-039.

McLENNAN, J.C. 1904.*On the radioactivity of mineral oils and natural gases.* Saint Louis : s.n..

MEDLEY, P. et BOLLHOFER, A. 2015.*Influence of group II metals on Radium-226 concentration ratios in the native green plum (*Buchanania obovata*) from the Alligator Rivers Region, Northern Territory, Australia.* Northern Territory, Australia : s.n..

M.S. Al-Masri A. Aba, A. Al-Hamwi, A. Shakhashiro. 2004. Preparation of in-house reference soil sample containing high levels of naturally occurring radioactive materials from the oil industry [Revue]. - Syria : [s.n.].

M.S. HAMLAT S. DJEFFAL, H. KADIB. 2001. Assessment of radiation exposures from naturally occurring radioactive materials in the oil and gas industry [Revue].

ODDO, J.E. 1993.*NORM Scale Formation: A Case Study of the Chemistry, Prediction, Remediation and Treatment in Wells of the Antrum Gas Field.* Society of Petroleum Engineers, Richardson. pp. 91–100. SPE 25937.

P. BERARD M.L. PERRIN, E. GAILLARD-LECANU, V. CHAMBRETTE, J. BRENOT, D. ROBEAU. 2001. Ra-226 et ses descendants à l'équilibre [Rapport] : Fiche Radionucléide Radium 226.

R. BIAGINI R. DERSCH, P. DE FELICE, S.M. JEROME, E.M.E. PERKIN, C. PONA, J. DE SANOIT, M.J. WOODS. 1995. Homogeneity testing of spiked reference materials [Livre]. - Sci. Total Environ. 173/174, 267–274 .

ROWAN, E.L., et al. 2011.*Radium Content of Oil- and Gas-Field Produced Waters in the Northern Appalachian Basin (USA): Summary and Discussion of Data.* Scientific Investigations Report. 2011–5135.

SHELL UK EXPLORATION AND PRODUCTION. 1990. Operating Standard OS 1.005: Handling of LSA Scale and Contaminated Equipment. London : s.n..

S.M. KHALIFA F.A. SHEHATA, El-S. El-AFIFI, H.F ALY. 1998. Fractionation and Leaching of Naturally Occurring Radioactive Waste Produced from Oil Production [Rapport] : journal / Hot Laboratory Centre, Atomic Energy Authority. - International Conference on Hazardous Waste: Sources, Effects and Management .

SUMMERLIN, J. et PRICHARD, H.M. 1985.*Radiological health implications of lead-210 and polonium-210 accumulation in LPG refineries.* Am. Ind. Hyg. Assoc. J. 46. pp. 202–205. Am. Ind. Hyg. Assoc. .

The International Association of Oil & Gas Producers. 2008. Guidelines for the management of Naturally Occurring Radioactive Material (NORM) in the oil & gas industry [Rapport]. - No. 412.

United States Atomic Energy. 1964.Comission Radiochemistry of radium [Livre].

VAN WEERS, A.W. 1997.*Current Practice of Dealing with Natural Radioactivity from Oil and Gas Production in EU Member States.* Office for Official Publications of the European Communities. Luxembourg : s.n..

WALDRAM, I.M. 1988.*Natural radioactive scale: The development of safe systems of work.* pp. 1057–1060.

Y.S. CORDOLIANI H. FOEHRENBACH. 2014. Radioprotection en milieu médical. Principes et mise en pratique. Exposition naturelle et artificielle [Livre].

ZHANG, T., et al. 2014.*Co-precipitation of Radium with Barium and Strontium Sulfate and Its Impact on the Fate of Radium during Treatment of Produced Water from Unconventional Gas Extraction.* s.l. : ENVIRONMENTAL SCIENCE AND TECHNOLOGY.

GLOSSAIRE DE SÛRETÉ DE L'AIEA

Terminologie employée en sûreté nucléaire et radioprotection édition 2007

Activité

Grandeur A pour une quantité de radionucléides dans un état énergétique donné à un instant donné, définie par la relation :

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

où dN est la valeur attendue du nombre de transformations nucléaires spontanées correspondant à cet état énergétique dans l'intervalle de temps dt (AGENCE DE L'OCDE POUR L'ÉNERGIE NUCLÉAIRE, 1997)

L'unité SI d'*activité* est l'inverse de la seconde (s^{-1}), appelée *becquerel* (Bq) (AGENCE DE L'OCDE POUR L'ÉNERGIE NUCLÉAIRE, 1997) .

- Exprimée auparavant en *curie* (Ci) ; les valeurs d'*activité* peuvent être données en Ci (avec entre parenthèses l'équivalent en Bq) si elles proviennent d'une référence où cette unité est utilisée.

Activité spécifique

L'*activité spécifique* d'une matière est l'*activité* par unité de masse ou de volume de la matière dans laquelle les radionucléides sont pour l'essentiel répartis uniformément (AGENCE INTERNATIONALE DE L'ÉNERGIE ATOMIQUE, 2005) .

Becquerel (Bq)

Unité SI d'*activité*, égale à une désintégration par seconde.

Elle remplace le *curie* (Ci), qui n'est pas une unité SI.

1 Ci = $3,7 \times 10^{10}$ Bq.

1 Bq = 27 pCi ($2,7 \times 10^{-11}$ Ci) approximativement.

Rayonnement de fond (bruit de fond)

Dose ou *débit de dose* (ou mesure observée liée à la *dose* ou au *débit de dose*) attribuable à toutes les *sources* autres que celle(s) qui est (sont) spécifiée(s).

Caractérisation

Détermination de la nature et de l'*activité* des radionucléides présents en un lieu donné.

Caractérisation de déchets

Détermination des propriétés physiques, chimiques et radiologiques de *déchets* en vue d'établir la nécessité d'un ajustement, d'un *traitement* ou d'un *conditionnement* ou la possibilité de manutention, de *transformation*, d'*entreposage* ou de *stockage définitif* ultérieurs.

Clairance

Effet net des *processus* biologiques d'élimination des radionucléides d'un tissu, d'un organe ou d'une région de l'organisme.

Coefficient de dose

Expression employée par la Commission internationale de Protection Radiologique comme synonyme de *dose par unité d'incorporation* mais parfois aussi pour décrire d'autres coefficients associant des grandeurs ou concentrations d'*activité* aux *doses* ou aux *débits de dose* comme le *débit de dose* externe à une distance spécifiée au-dessus d'une surface avec un dépôt par unité de surface d'une *activité* donnée d'un radionucléide donné. Afin d'éviter toute confusion, l'expression *coefficient de dose* doit être utilisée avec prudence.

Contamination

Présence fortuite ou indésirable de *substances radioactives* sur des surfaces, ou dans des solides, des liquides ou des gaz (y compris dans l'organisme humain), ou *processus* causant cette présence.

Contrôle radiologique

Mesure de la *dose* ou de la *contamination* en vue de l'*évaluation* ou de la maîtrise de l'*exposition* aux *rayonnements* ou à des *substances radioactives*, et interprétation des résultats. (AGENCE DE L'OCDE POUR L'ÉNERGIE NUCLÉAIRE, 1997)

Contrôle radiologique de l'environnement

Mesure des *débits de dose* externe dus à des *sources* présentes dans l'environnement ou des concentrations de radionucléides dans des échantillons environnementaux.

Contrôle radiologique de routine

Contrôle radiologique associé à l'*exploitation* normale et destiné à : 1) démontrer que les conditions de travail, y compris les niveaux de *dose individuelle*, restent satisfaisantes et 2) satisfaire aux *prescriptions* réglementaires.

- Le *contrôle radiologique de routine* peut être un contrôle individuel ou un contrôle du lieu de travail.
- Oppos. : *contrôle radiologique lié à une tâche* et *contrôle radiologique spécial*.

Contrôle radiologique des sources

Mesure de l'*activité* des *matières radioactives* rejetées dans l'environnement ou des *débits de dose* externe dus à des *sources* dans une *installation* ou *activité*.

Contrôle radiologique de zone

Forme de *contrôle radiologique du lieu de travail* qui consiste à surveiller une zone en faisant des mesures en différents points de cette zone.

Contrôle radiologique du lieu de travail

Contrôle radiologique effectué au moyen de mesures faites dans l'environnement de travail.

Contrôle radiologique individuel

Contrôle radiologique basé sur des mesures fournies par l'équipement porté par les *travailleurs* ou sur la mesure des quantités de *matières radioactives* présentes dans leur organisme ou sur leur corps.

Contrôle radiologique lié à une tâche

Contrôle radiologique appliqué à une opération spécifique, afin de fournir des données utiles à la prise de décisions immédiates sur la gestion d'une opération.

Contrôle réglementaire

Toute forme de *contrôle* ou de réglementation appliquée à des *installations* ou à des *activités* par un *organisme de réglementation* pour des raisons liées à la *radioprotection*, ou bien à la *sûreté* ou à la *sécurité des sources radioactives* (AIEA, 2004) .

Curie (Ci)

Unité d'*activité*, égale à $3,7 \times 10^{10}$ Bq (exactement).

- Remplacé par le *becquerel* (Bq). Les valeurs d'*activité* peuvent être données en Ci (avec entre parenthèses l'équivalent en Bq) si elles proviennent d'une référence où cette unité est utilisée.
- À l'origine, *activité* d'un gramme de radium.

Débit de dose

Bien que, en principe, le *débit de dose* puisse être défini par rapport à n'importe quelle unité de temps (*dose annuelle* par exemple), dans les *publications de l'AIEA*, l'expression *débit de dose* est utilisée uniquement pour des périodes courtes, par exemple *dose* par seconde ou *dose* par heure.

Déchet exempté

Déchet pour lequel le *contrôle réglementaire* a été levé conformément aux principes d'*exemption*.

Déchet mixte

Déchet radioactif contenant également des substances toxiques ou dangereuses non *radioactives*.

Déchet radioactif

Matière radioactive sous forme gazeuse, liquide ou solide pour laquelle aucune utilisation ultérieure n'est prévue par la partie contractante ou une personne physique ou morale dont la décision est acceptée par la partie contractante et qui est contrôlée en tant que *déchet radioactif* par un *organisme de réglementation* conformément au cadre législatif et réglementaire de la partie contractante.] (AIEA, 1997) .

Décontamination

Élimination totale ou partielle de la *contamination* par un *processus* physique, chimique ou biologique délibéré.

Diffusion

Mouvement de radionucléides par rapport au milieu dans lequel ils se trouvent, sous l'effet d'un gradient de concentration.

Dispersion

Propagation de radionucléides dans l'air (*dispersion aérodynamique*) ou dans l'eau (*dispersion hydrodynamique*) résultant essentiellement de *processus* physiques affectant la vitesse des différentes molécules dans le milieu ambiant.

Dose

Mesure de l'énergie déposée par un *rayonnement* dans une cible.

Dose par unité d'incorporation

Dose efficace engagée résultant de l'*incorporation* d'une manière spécifiée (habituellement par ingestion ou par inhalation) d'une unité d'*activité* d'un radionucléide donné sous une forme chimique donnée.

Pour les *incorporations*, cette expression est synonyme de *coefficient de dose*.

➤ Unité : Sv/Bq.

➤ **Dose absorbée**

L'énergie cédée par le rayonnement à l'unité de masse tissulaire est exprimée en gray (Gy, qui est égal à un joule par kilogramme) ;

➤ **Dose efficace**

La connaissance des sensibilités relatives des divers organes aux cancers radioinduits, a été obtenue soit à partir d'études animales, soit par l'étude de populations irradiées telles que celles des survivants des bombardements d'Hiroshima et de Nagasaki. Les études récentes ont permis de mieux définir les cellules qui ont la plus grande probabilité d'être affectées par l'irradiation et d'attribuer à chaque tissu et organe un facteur de risque stochastique, représentatif du détriment global (effet cancer, effets génétiques et raccourcissement de la durée de vie). Ce facteur, appelé W_T , permet pour chaque organe d'estimer sa contribution relative au risque stochastique total. Les valeurs attribuées à ces facteurs de pondération ont été révisées dans la CIPR 60 (ICRP, 1991).

➤ La somme des doses équivalentes pondérées à l'aide des facteurs W_T , est appelée dose efficace ou dose efficace engagée, E (Sv) lorsqu'elle se rapporte à la contamination interne.

Équilibre radioactif

État d'une chaîne de désintégration *radioactive* (ou d'une partie de la chaîne) lorsque l'*activité* de chaque radionucléide dans la chaîne (ou partie de la chaîne) est la même.

➤ Cet état est atteint lorsque le précurseur a une *période* beaucoup plus longue que celle des descendants, et au bout d'un temps égal à plusieurs fois la *période* du descendant qui a la *période* la plus longue. C'est pourquoi on utilise aussi l'expression « équilibre séculaire ».

Étalonnage

Mesure ou ajustement d'un instrument, d'un *composant* ou d'un *système* pour s'assurer que sa précision ou sa réponse est acceptable.

Étude radiologique

Évaluation des conditions radiologiques et des dangers potentiels associés à la production, à l'utilisation, à la cession, au *rejet*, au *stockage définitif* ou à la présence de *matières radioactives* ou d'autres *sources de rayonnements*.

Exemption

Détermination par un *organisme de réglementation* qu'une *source* ou une *pratique* n'a pas à être soumise à certains ou à l'ensemble des éléments du *contrôle réglementaire* du fait que l'*exposition* (y compris l'*exposition potentielle*) due à la *source* ou à la *pratique* est trop faible pour justifier l'application de ces éléments ou que c'est l'option optimale de *protection*, indépendamment du niveau réel des *doses* ou des *risques*.

Grandeurs de dose

Dose absorbée, D . Grandeur fondamentale D en dosimétrie, définie par la relation :

$$D = \frac{d\bar{\varepsilon}}{dm}$$

où $d\bar{\varepsilon}$ est l'énergie moyenne transmise par le *rayonnement ionisant* à la matière dans un élément de volume et dm la masse de matière dans l'élément de volume (AGENCE DE L'OCDE POUR L'ÉNERGIE NUCLÉAIRE, 1997) .

- On peut calculer l'énergie moyenne pour tout volume défini, la *dose* moyenne étant égale à l'énergie totale transmise dans ce volume divisée par la masse du volume.
- Unité : le *gray* (Gy), égal à 1 J/kg (ancienne unité : le *rad*).

Dose à un organe. Dose absorbée moyenne D_T à un tissu ou un organe T spécifié de l'organisme humain, donnée par la relation :

$$D_T = \frac{1}{m_T} \int_{m_T} D dm = \frac{\varepsilon_T}{m_T}$$

où m_T est la masse du tissu ou de l'organe, D la *dose absorbée* dans l'élément de masse dm et ε_T l'énergie totale transmise.

Dose efficace, E , Grandeur définie comme étant la somme des produits des *doses équivalentes* aux tissus par leurs *facteurs de pondération tissulaires* respectifs :

$$E = \sum_T w_T H_T$$

où H_T est la *dose équivalente* au tissu T et w_T le *facteur de pondération tissulaire* pour le tissu T .

- L'unité de *dose efficace* est le *Sievert* (Sv), égal à 1 J/kg. Le *rem*, égal à 0,01 Sv, est parfois utilisé comme unité de *dose équivalente* et de *dose efficace*. Le *rem* n'est pas utilisé dans les *publications de l'AIEA* sauf dans des citations directes d'autres publications, auquel cas la valeur en *sieverts* est indiquée entre parenthèses.
- La *dose efficace* est une mesure de *dose* visant à rendre compte de l'ampleur du *détriment radiologique* pouvant résulter de la *dose*.
- Les valeurs de *dose efficace* peuvent être comparées directement pour tous les types de *rayonnements* et tous les modes d'*exposition*.

Protection

(contre les *rayonnements*) : **radioprotection (ou protection radiologique).** Protection des personnes contre les effets d'une *exposition* à des *rayonnements ionisants* et moyens d'assurer cette protection.

Radioactivité

Phénomène de désintégration aléatoire spontanée d'atomes, habituellement accompagné de l'émission d'un *rayonnement*.

Dans les *publications de l'AIEA*, le terme *radioactivité* doit être employé uniquement pour se référer à ce phénomène. Pour se référer à une grandeur physique ou à une quantité de *substance radioactive*, il convient d'employer le terme *activité*.

Radionucléides naturels

Radionucléides naturellement présents sur la Terre en quantités importantes.

- Cette expression sert généralement à désigner les radionucléides primordiaux (potassium 40, uranium 235, uranium 238, thorium 232) et leurs produits de désintégration *radioactive*.
- Oppos. : radionucléides artificiels, radionucléides d'origine artificielle, radionucléides anthropiques, radionucléides résultant d'activités humaines.

Rayonnement ionisant

Aux fins de la *radioprotection*, *rayonnement* capable de produire des paires d'ions dans la matière biologique (AGENCE DE L'OCDE POUR L'ÉNERGIE NUCLÉAIRE, 1997) .

Risques radiologiques

- Effets sanitaires nocifs de l'*exposition* aux *rayonnements* (y compris la probabilité que de tels effets se produisent).
- Tout autre *risque* lié à la *sûreté* (y compris les *risques* aux écosystèmes de l'environnement) pouvant être une conséquence directe :
 - D'une *exposition* à des *rayonnements* ;
 - De la présence de *matières radioactives* (y compris de *déchets radioactifs*) ou de leur *rejet* dans l'environnement ;
 - D'une perte de *contrôle* du cœur d'un réacteur nucléaire, d'une réaction en chaîne, d'une *source radioactive* ou de toute autre *source de rayonnements*.

Sievert (Sv)

Unité SI de la *dose équivalente* et de la *dose efficace*, égale à 1 J/kg.

Voie d'exposition

Voie par laquelle des *rayonnements* ou des radionucléides peuvent atteindre des êtres humains et entraîner une *exposition*.

- Une *voie d'exposition* peut être très simple, comme l'*exposition externe* due à des radionucléides en suspension dans l'air, mais elle peut être aussi une chaîne plus complexe, comme l'*exposition interne* due au lait de vaches ayant mangé de l'herbe contaminée par des radionucléides déposés sur le sol (chaîne alimentaire).