

REPUBLIQUE DU CAMEROUN

Paix – Travail – Patrie

UNIVERSITE DE YAOUNDE I
FACULTE DES SCIENCES
DEPARTEMENT DE PHYSIQUES

Cétre dé Réchéché ét dé
Formation Doctoralés én
Sciéncés Technologés
ét Géosciéncés

LABORATOIRE DE PHYSIQUE
NUCLEAIRE, ATOMIQUE,
MOLECULAIRE
ET BIOPHYSIQUE



REPUBLIC OF CAMEROUN

Peace – Work – Fatherland

UNIVERSITY OF YAOUNDE I
FACULTY OF SCIENCE
DEPARTMENT OF PHYSICS

Réséarch and Postgraduaté
School for Sciéncé
Téchnology and
Géosciéncés

**DETERMINATION DE LA CONCENTRATION
D'ACTIVITE DES RADIOELEMENTS NATURELS
EMETTEURS ALPHA DANS LE SOL ET LES
PLANTES DE LA LOCALITE DE LOLODORF,
REGION DU SUD-CAMEROUN ; APPLICATION A
L'ETUDE DU TRANSFERT SOL-FOUGERE DES
RADIONUCLEIDES**

THESE

Présentée et soutenue en vue de l'obtention du
Doctorat/PhD en Physique

Par : **MVONDO Stanislas**
Titulaire d'un D.E.A de Physique

Sous la direction de
OWONO ATEBA Pierre,
Maître de Conférences, UYI

Année Académique : 2019





DEPARTEMENT DE PHYSIQUE
DEPARTMENT OF PHYSICS

ATTESTATION DE CORRECTION DE LA THESE DE DOCTORAT/Ph.D

Nous, Professeur SAÏDOU et Professeur BEN-BOLIE Germain Hubert ; Examineurs et Professeur NDJAKA Jean Marie Bienvenue, Président du jury de la Thèse de Doctorat/Ph.D de Monsieur MVONDO Stanislas, Matricule 95K629, préparée sous la direction du Professeur OWONO ATEBA Pierre sur le thème : «DETERMINATION DE LA CONCENTRATION D'ACTIVITE DES RADIOELEMENTS NATURELS EMETTEURS ALPHA DANS LE SOL ET LES PLANTES DE LA LOCALITE DE LOLODORF, REGION DU SUD-CAMEROUN ; APPLICATION A L'ETUDE DU TRANSFERT SOL-FOUGERE DES RADIONUCLEIDES», soutenue le vendredi 15 novembre 2019, en vue de l'obtention du grade de Docteur/Ph.D en Physique, Spécialité Physique nucléaire, atomique moléculaire et Biophysique, option Physique Nucléaire, attestons que toutes les corrections demandées par le jury de soutenance ont été effectuées.

En foi de quoi, la présente attestation lui est délivrée pour servir et valoir ce que de droit.

Fait à Yaoundé, le 13 FEV 2020

Les Examineurs

Pr SAÏDOU

Pr BEN-BOLIE Germain H.

Pr NDJAKA Jean Marie

Le Chef de Département de Physique



NDJAKA Jean-Marie Bienvenu

Dédicace

Je dédie cette thèse à :

- mes regrettés grands parents qui m'ont élevé et comblé d'affection ;
 - ma feuë mère, Ambomo Christine
 - ma tendre épouse et mes enfants ;
- toute la famille restreinte de feu Eloundou Mvondo Léon.

Remerciements

Avant tout, je rends grâce à **Dieu Tout-Puissant** qui m'a créé, m'a maintenu en vie jusqu'à ce jour et m'a accordé la grâce d'atteindre ce niveau de la Science.

Ma profonde gratitude à l'endroit du Professeur Dr-Ingénieur **OWONO ATEBA Pierre** qui, non seulement a accepté de diriger les travaux de cette thèse, mais en plus m'a donné le goût de la Physique depuis le premier cycle universitaire. Je garde de lui les leçons inoubliables sur le travail bien fait et une méthodologie de maîtrise profonde des concepts de la Physique.

Je remercie profondément le Professeur **BEN-BOLIE Germain Hubert**, qui m'a toujours mis en éveil pour arriver au bout de ce travail. Sa rigueur, sa pugnacité ont efficacement contribué à l'aboutissement de ce travail. Je lui en resterai infiniment reconnaissant.

Il me plaît de remercier le **Jury** qui se chargera d'évaluer cette thèse, leurs remarques et observations vont contribuer à améliorer ce travail.

Mes remerciements s'adressent aussi à tous **les enseignants du Département de Physique** pour la formation reçue depuis la première année jusqu'au DEA.

Pendant mes études à la faculté des Sciences de l'Université de Yaoundé 1, j'ai bénéficié d'un encadrement particulier de certains enseignants. Je pense ici aux Professeurs **NDJAKA Jean Marie**, **MANGUELLE-DICOUM Eliezer**, **KOFANE Timoléon Crépin**, **EKOBENA FOU DA Henri**, **ESSIMBI ZOBO Bernard**, **PEMHA Elkana**, **WAFFO Paul** et **ZEKENG Serge**. Leurs conseils et leurs encouragements m'ont été d'une grande utilité. Je les prie d'accepter mes sincères remerciements.

Mes remerciements vont à l'endroit de **l'Agence Internationale de l'Energie Atomique (AIEA)** qui m'a accordé une bourse, laquelle m'a permis de faire les analyses des échantillons par spectrométrie α .

J'exprime une profonde gratitude au **Dr. SIMO Augustin**, Directeur Général de l'Agence Nationale de Radioprotection (ANRP), grâce à qui j'ai pu obtenir la bourse m'ayant permis de réaliser cette étude. Je pense aussi au soutien qu'il n'a cessé de m'apporter depuis son arrivée à la tête de l'Agence Nationale de Radioprotection (ANRP).

Je remercie très sincèrement le Dr. **CARVALHO Fernando** de l'Institut des Sciences et Techniques Nucléaires de Lisbonne au Portugal, qui m'a encadré pendant mon stage dans cet institut et a accepté, en tant que Chef de Laboratoire, que mes échantillons soient analysés.

Grâce à lui, je me suis imprégné de la spectrométrie α sur le plan pratique. Je ne saurais oublier ses collaborateurs, **JAO Motta et MARGARIDA Malta**, qui m'ont assisté pendant les manipulations. Je leur adresse ici mes sincères remerciements.

Je remercie particulièrement **Dr ELE ABIAMA Patrice et Dr BEYALA ATEBA Jean Félix**, mes promotionnaires de DEA et dont l'implication dans ce travail a été d'un grand apport. Leurs travaux de recherche sur la radioactivité environnementale m'ont beaucoup inspiré dans ce travail.

Je remercie Dr. **MVOGO Alain** pour son appui et ses conseils tout au long de ce travail.

Je remercie mon oncle, **l'Abbé Engelbert AYIDA**, qui m'a soutenu dans mes études et m'a inculqué une éducation qui m'a permis de braver les étapes de la vie et d'arriver où je suis aujourd'hui. Puisse Dieu Tout Puissant le récompenser au centuple.

J'exprime toute ma gratitude à Monsieur **Ondobo Félicien** et son épouse qui m'ont encadré pendant mon second cycle du secondaire. Leur éducation, leurs conseils font de moi aujourd'hui un homme responsable.

Je remercie aussi mon père **Mbarga Janvier**, pour son soutien et son affection.

Je remercie mes frères, oncles et tantes, **Eloundou Léon, Menyé Fidèle, Onana Eloundou Mathias, Ndzana Eloundou Joseph, Mbomo Eloundou Anne épouse Até Simon, Mvondo Eloundou Léonie** pour leur soutien et leur affection.

Il me plaît aussi de remercier mes amis et collègues :

- **Dr OTTOU Abé Martin** pour son soutien et son esprit de fraternité ;
- **OKALY Bizarre**, qui m'a aidé à l'accomplissement de certaines tâches informatiques dans la réalisation de ce travail ;
- **YIMELE Blaise Clovis** avec qui je partage la bonne humeur au quotidien.

Je dis enfin merci à tous les membres de **ma famille à NOUMA** et de ma **belle-famille à Nkolnyada par Okola**, pour leurs soutiens dans toutes mes actions.

Table des matières

Dédicace	i
Remerciements	ii
Table des matières	iv
Résumé	vii
Abstract	viii
Liste des Figures	x
Liste des tableaux	xii
INTRODUCTION GENERALE	2
CHAPITRE 1 : REVUE DE LA LITTERATURE SUR LES ELEMENTS RADIOACTIFS NATURELS EMETTEURS α ET SUR L'ETAT RADIOLOGIQUE DE LA ZONE D'ETUDE	6
1.1. Généralités sur la radioactivité et les matières radioactives naturelles émetteurs α	6
1.1.1. Filiation et famille radioactives - Equilibre radioactif.....	7
1.1.1.1. Filiation radioactive et famille radioactive	7
1.1.1.2. Equilibres radioactifs.....	7
1.1.2. Les familles radioactives naturelles.....	10
1.1.2.1. La famille de l'uranium-238.....	11
1.1.2.2. La famille de l'uranium-235.....	11
1.1.2.3. La famille du thorium-232.....	11
1.1.3. Propriétés chimiques et nucléaires des radioéléments naturels émetteurs α	15
1.1.3.1. L'uranium naturel.....	15
1.1.3.2. Le thorium naturel.....	16
1.1.3.3. Le Polonium naturel.....	17
1.1.3.4. Le radium naturel	18
1.2. Généralités sur la radioactivité α	19
1.2.1. Définition et propriété.....	19
1.2.2. Bilan énergétique de la désintégration α	19
1.2.3. Condition pour qu'un noyau subisse une désintégration α	20
1.2.4. Théorie quantique de la désintégration α	21
1.2.5. La détection du rayonnement α	24
1.2.6. Organisation d'une chaîne spectrométrique α	26
1.2.7. Spectre des énergies α	27
1.3. Analyse par spectrométrie α d'un échantillon environnemental	28
1.3.1. Extraction radiochimique.....	28
1.3.2. Dépôt ou l'électrodépôt	28

1.3.3.	Comptage α	28
1.4.	Données sur la localité de Lolodorf	29
1.4.1.	Situation géographique de Lolodorf.....	29
1.4.2.	Potentiel uranifère de Lolodorf	29
1.4.3.	Radioactivité naturelle dans la localité de Lolodorf	31
	CHAPITRE 2 : MATERIELS ET METHODES	35
2.1.	Collecte des échantillons	35
2.1.1.	Prélèvement des échantillons de sols.....	35
2.1.2.	Prélèvement des échantillons de fougère.....	35
2.1.2.1.	Propriétés de la fougère.....	35
2.1.2.2.	Prélèvement.....	36
2.2.	Préparation des échantillons pour analyse	36
2.2.1.	Préparation des échantillons de végétaux	36
2.2.1.1.	Matériel utilisé	36
2.2.1.2.	Procédé	38
2.2.2.	Préparation des échantillons de sols.....	40
2.2.2.1.	Matériel utilisé	40
2.2.2.2.	Mode opératoire	42
2.3.	Traitement chimique pour extraction des radioéléments	42
2.3.1.	Matériel utilisé	43
2.3.2.1.	Extraction et déposition du polonium	46
2.4.	Electrodéposition de l'uranium, du thorium et du radium	53
2.4.1.	Matériel utilisé	53
2.5.	Analyse spectrométrique α	54
2.5.1.	Matériel utilisé	55
2.5.2.	Comptage α	56
2.5.3.	Etude des spectres	59
2.6.	Calcul du débit de dose gamma absorbée dans l'air et de la dose efficace annuelle par irradiation externe	65
2.7.	Facteurs de transfert sol-fougère des radioéléments émetteurs α	65
	CHAPITRE 3 : RESULTATS ET DISCUSSION	68
3.1.	Contrôle qualité de la chaîne spectrométrique	68
3.1.1.	Efficacité des détecteurs	68
3.1.2.	Rendement chimique	68
3.1.3.	Test de la méthode à partir d'un échantillon de référence de l'AIEA.....	69
3.2.	Concentration des radioéléments naturels émetteurs α dans les sols	69

3.2.1.	Concentration du polonium-210 dans les sols	69
3.2.2.	Concentration des radioisotopes de l'uranium naturel dans le sol	70
3.2.3.	Concentration des radioisotopes naturels du thorium dans le sol	72
3.2.5.	Bilan de la concentration des radioéléments naturels émetteurs α dans le sol.....	75
3.3.	Concentration d'activité des radioéléments naturels émetteurs α dans la fougère.....	76
3.3.1.	Concentration d'activité de ^{210}Po dans la fougère.....	76
3.3.2.	Concentration des radioisotopes de l'uranium naturel dans la fougère.....	76
3.3.3.	Concentrations d'activité des radioisotopes du thorium naturel dans la fougère.....	78
3.3.4.	Concentration du radium dans les fougères	79
3.4.	Etude du transfert sol-fougère des radioéléments naturels émetteurs α.....	81
3.4.1.	Concentrations relatives des radioéléments émetteurs α dans les sols et dans la fougère.....	81
3.4.2.	Calcul des facteurs de transfert sol-fougère des radioéléments émetteurs α	82
3.5.	Evaluation de l'impact radiologique de la concentration des radioéléments dans le sol.....	83
3.5.1.	Débit de dose absorbée et de dose efficace annuelle.....	83
3.5.2.	Risque radiologique associé	84
3.6.	Discussion	85
3.6.1.	Concentration des radioéléments dans les sols	85
3.6.2.	Concentration des radioéléments dans les fougères.....	86
3.6.3.	Facteurs de transfert sol-fougère des radioéléments	86
3.6.4.	Impact radiologique de la concentration des radioéléments dans les sols	87
3.6.5.	Etude comparative	88
CONCLUSION GENERALE		91
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES		95
ANNEXES		101
Annexe 1 : Effet tunnel et la radioactivité alpha		102
Annexe 2 : Vue en images des produits utilisées pour l'extraction chimique des radionucléides		107
Annexe 2 : Publications scientifiques émanant du travail fait.....		112

Résumé

Cette étude a été réalisée dans les localités de **Melondo** et **Ngombas** situées aux environs de la zone de **Lolodorf**, Région du Sud Cameroun. Dix échantillons de sols et de fougère (*Filicophyta*) prélevés dans ces deux localités ont été analysés par spectrométrie α en vue de la détermination de la concentration d'activité des radioéléments émetteurs α suivants : ^{210}Po , ^{238}U , ^{235}U , ^{234}U , ^{232}Th , ^{230}Th , ^{228}Th et ^{226}Ra . Une déduction des facteurs de transfert sol-fougère desdits radioéléments ainsi qu'une estimation du débit de dose absorbée dans l'air et de la dose efficace annuelle ont été faites.

Dans le sol, les valeurs moyennes de ces concentrations d'activité exprimées en Bq/kg poids sec sont : $^{210}\text{Po}(130 \pm 10)$, $^{238}\text{U}(126 \pm 11.6)$, $^{235}\text{U}(5 \pm 1)$, $^{234}\text{U}(131 \pm 10)$, $^{232}\text{Th}(400 \pm 22)$, $^{230}\text{Th}(145 \pm 11)$, $^{228}\text{Th}(381 \pm 21)$ et $^{226}\text{Ra}(154 \pm 28)$ à Melondo; et $^{210}\text{Po}(228 \pm 1)$, $^{238}\text{U}(170 \pm 11)$, $^{235}\text{U}(9 \pm 2)$, $^{234}\text{U}(179 \pm 12)$, $^{232}\text{Th}(200 \pm 18)$, $^{230}\text{Th}(184 \pm 18)$, $^{228}\text{Th}(228 \pm 22)$ et $^{226}\text{Ra}(416 \pm 7)$ à Ngombas. Dans la fougère ces concentrations d'activité sont : $^{210}\text{Po}(35 \pm 3)$, $^{238}\text{U}(0.68 \pm 0.05)$, $^{235}\text{U}(0.042 \pm 0.01)$, $^{234}\text{U}(0.90 \pm 0.05)$, $^{232}\text{Th}(1.2 \pm 0.2)$, $^{230}\text{Th}(0.7 \pm 0.1)$, $^{228}\text{Th}(39 \pm 3)$ et $^{226}\text{Ra}(14 \pm 3)$ à Melondo et $^{210}\text{Po}(24 \pm 2)$, $^{238}\text{U}(0.82 \pm 0.06)$, $^{235}\text{U}(0.046 \pm 0.01)$, $^{234}\text{U}(0.92 \pm 0.06)$, $^{232}\text{Th}(0.8 \pm 0.2)$, $^{230}\text{Th}(0.9 \pm 0.2)$, $^{228}\text{Th}(15 \pm 5)$ et $^{226}\text{Ra}(14 \pm 3)$ à Ngombas.

Les facteurs de transfert sol-fougère (en 10^{-3} kg/kg) pour chacun de ces radioéléments sont : $^{210}\text{Po}(164)$, $^{238}\text{U}(5)$, $^{235}\text{U}(7)$, $^{234}\text{U}(6)$, $^{232}\text{Th}(3)$, $^{230}\text{Th}(5)$, $^{228}\text{Th}(79)$, et $^{226}\text{Ra}(51)$. Le facteur de transfert le plus élevé est celui du ^{210}Po , probablement à cause de la déposition atmosphérique. Les facteurs de transfert de l'uranium et du thorium sont similaires à ceux donnés dans le handbook de l'IAEA pour les herbes en général.

Les débits de dose absorbée moyens D (en nGy/h) dans l'air sont de 361,90 à Melondo et 358,21 à Ngombas. Les doses efficaces moyennes correspondantes sont respectivement de 0,428mSv/a et 0,300mSv/a. Ces valeurs sont inférieures à la valeur limite permise par les normes de l'AIEA qui est de 1mSv/an. Toutefois, les indices de risque externe (H_{ex}) et interne (H_{in}) associés calculés à partir des concentrations de ^{226}Ra , ^{232}Th et ^{40}K sont supérieurs à 1, preuve que ces localités présentent un risque radiologique.

Mots clés : Radioactivité α , spectrométrie α , concentration d'activité, transfert sol-fougère des radioéléments, dose efficace par irradiation externe.

Abstract

This study was carried out in the localities **MELONDO** and **NGOMBAS** located at LOLODORF Subdivision and surroundings in the Southern Region of Cameroon. This locality is known to be uranium-bearing and high background radiation areas (HBRA). Activity concentrations of naturally occurring radionuclides ^{210}Po , ^{238}U , ^{235}U , ^{234}U , ^{232}Th , ^{230}Th , ^{228}Th and ^{226}Ra were determined in soil and fern (filicophyta) samples collected at 10 points in both localities. In soil, the average values of these activity concentrations (in Bq.kg^{-1} d.w.) were $^{210}\text{Po}(130 \pm 10)$, $^{238}\text{U}(126 \pm 11.6)$, $^{235}\text{U}(5 \pm 1)$, $^{234}\text{U}(131 \pm 10)$, $^{232}\text{Th}(400 \pm 22)$, $^{230}\text{Th}(145 \pm 11)$, $^{228}\text{Th}(381 \pm 21)$ and $^{226}\text{Ra}(154 \pm 28)$ at Melondo; and $^{210}\text{Po}(228 \pm 1)$, $^{238}\text{U}(170 \pm 11)$, $^{235}\text{U}(9 \pm 2)$, $^{234}\text{U}(179 \pm 12)$, $^{232}\text{Th}(200 \pm 18)$, $^{230}\text{Th}(184 \pm 18)$, $^{228}\text{Th}(228 \pm 22)$ and $^{226}\text{Ra}(416 \pm 7)$ at Ngomba. In fern the average activity concentrations were: $^{210}\text{Po}(35 \pm 3)$, $^{238}\text{U}(0.68 \pm 0.05)$, $^{235}\text{U}(0.042 \pm 0.01)$, $^{234}\text{U}(0.90 \pm 0.05)$, $^{232}\text{Th}(1.2 \pm 0.2)$, $^{230}\text{Th}(0.7 \pm 0.1)$, $^{228}\text{Th}(39 \pm 3)$ and $^{226}\text{Ra}(14 \pm 3)$ at Melondo and $^{210}\text{Po}(24 \pm 2)$, $^{238}\text{U}(0.82 \pm 0.06)$, $^{235}\text{U}(0.046 \pm 0.01)$, $^{234}\text{U}(0.92 \pm 0.06)$, $^{232}\text{Th}(0.8 \pm 0.2)$, $^{230}\text{Th}(0.9 \pm 0.2)$, $^{228}\text{Th}(15 \pm 5)$ and $^{226}\text{Ra}(14 \pm 3)$ at Ngomba.

The soil-fern transfer factors (TF) (in $10^{-3} \text{ kg.kg}^{-1}$) were respectively $^{210}\text{Po}(164)$, $^{238}\text{U}(5)$, $^{235}\text{U}(7)$, $^{234}\text{U}(6)$, $^{232}\text{Th}(3)$, $^{230}\text{Th}(5)$, $^{228}\text{Th}(79)$, and $^{226}\text{Ra}(51)$. The highest TF for fern was for ^{210}Po , probably because of atmospheric deposition. The TFs of uranium and thorium were comparable to those given in the IAEA handbook for grass.

The estimated total average absorbed dose rate D (in nGy.h^{-1}) in air at 1 m above ground level are 361.90 and 358.21 at Melondo and at Ngombas respectively. The corresponding total annual effective doses are respectively 0.428 mSv.y^{-1} and 0.300 mSv.y^{-1} . These values are below the permissible limit 1 mSv.y^{-1} (BSSNo.115, 1996). But the calculation of external and internal index hazards H_{ex} et H_{in} gives greater than 1, evidence that the area presents a radiological risk.

Keyword: α radioactivity, α spectrometry, activity concentration, soil-fern transfer factor of radioelement, effective dose by external irradiation.

Liste des abréviations et symboles

AIEA : Agence Internationale de l’Energie Atomique

ANRP : Agence Nationale de Radioprotection

BSS : Basic Safety Standards

BRGM: Bureau de Recherche Géologique et Minière

CEA: Commission de l’Energie Atomique

ICRP : International Commission on Radiological Protection

ISTN : Institut des Sciences et Techniques Nucléaires

MRN : Matière Radioactive Naturelle

RESRAD: Residual Radioactivity

SRM: Standard Reference Material

TECDOC : Technical Document

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

α : particule α ou noyau d’hélium

β^- : Electron (e-)

β^+ : Positron (e+)

γ : Photon gamma

λ_i : Constante de désintégration du noyau radioactif i

Liste des Figures

Figure1 : allure des variations dans le temps de la population de chaque élément de la filiation dans le cas de deux désintégrations successives.	8
Figure 2 : famille radioactive de l'uranium-238	12
Figure3 : Famille radioactive de l'uranium-235	13
Figure 4 : Famille radioactive du thorium-232	14
Figure5 : Roches uranifères	15
Figure6 : Représentation de la barrière de potentiel nucléaire du noyau	22
Figure7 : Interaction des particules α avec les atomes de la matière se résumant à la capture par attraction coulombienne des électrons par la particule α	24
Figure8 : variation de la perte linéique d'énergie en fonction de la distance de pénétration des particules α dans le milieu	25
Figure 9 : Organisation générale d'un dispositif de détection et de mesure des rayonnements ionisants	26
Figure10 : Poste de spectrométrie α	27
Figure11 : Exemple de spectre de raies	27
Figure12 : Carte uranifère du Cameroun montrant la localité de Lolodorf	30
Figure13 : Carte géologique et radiologique de la région de Lolodorf	31
Figure14 : Fougère médicinale	36
Figure15 : Récipient en aluminium, balance et broyeur (à gauche le broyeur et à droite le récipient en aluminium posé sur la balance).	37
Figure16 : Le lyophilisateur	37
Figure17 : L'incinérateur	38
Figure18 : Flacons en plastique transparent pour la conservation des échantillons préparés	38
Figure19 : Pilon en porcelaine.....	41
Figure20 : Four contenant six échantillons.	41
Figure21 : Tamiseur électrique	42
Figure22 : Balance électrique de haute précision	43
Figure23 : Micropipette	44
Figure24 : Tubes téflon.....	44
Figure25 : Bêchers et Plaque chauffante recouverte de papier aluminium	44
Figure26 : Four à micro-ondes	45
Figure27 : Plaque magnétique pour la déposition du polonium	45
Figure28 : Colonnes de résine pour chromatographie	45
Figure29 : digramme de la séparation chromatographie par la technique 1	49
Figure30 : représentation schématique de la séparation chromatographique technique 2	52
Figure31 : Dispositif d'électrolyse pour électrodéposition	53
Figure32 : Poste de spectrométrie α . A droite on a six chambres à vides où sont logés les détecteurs, à gauche, on a l'électronique de production et de traitement du signal issu des détecteurs.	55
Figure33 : Système informatique équipé du logiciel MAESTRO. On observe les pics alpha des radioisotopes mis en jeu.	56
Figure34 : Source standard multi α	57
Figure35 : Spectre du polonium.....	60
Figure36 : Spectre de l'uranium vu sur ordinateur.....	60
Figure37 : spectre du thorium.....	63
Figure38 : Spectre du radium vu à l'ordinateur	64

Figure39 : comparaison des concentrations d'activité des isotopes de U dans les sols des deux localités	72
Figure40 : comparaison des concentrations d'activité des isotopes naturels du Th dans les sols	73
Figure41 : Comparaison des concentrations des radioéléments dans les sols	75
Figure42 : Comparaison des concentrations d'activité de l'uranium dans la fougère	78
Figure43 : Comparaison des concentrations d'activité des radioisotopes naturels du thorium dans la fougère.....	79
Figure44 : Concentration des radioéléments émetteurs α dans les fougères des deux localités	81
Figure45 : Concentration d'activité des radioéléments dans le sol et la fougère.....	82
Figure 46 : Variation du potentiel pour une barrière carrée	102
Figure 47 : Barrière de potentiel variable	103
Figure 48 : Variation du potentiel de la particule alpha autour du noyau atomique	104
Figure 50 : Flacon d'acide chlorhydrique pur à 37%	107
Figure 49 : Flacon d'acide nitrique pur à 65%	107
Figure 51 : flacon d'octanol.....	108
Figure 52 : Flacon contenant de l'eau oxygénée	108
Figure 53 : Solution de ^{209}Po	109
Figure 54 : Solution de ^{232}U, ^{228}Th et ^{224}Ra	109
Figure 55 : Résine AG 50W-X12.....	110
Figure 56 : Flacon d'une solution de chlorure de magnésium	110
Figure 57 : Acide oxalique	111
Figure 58 : Acide fluorique	111

Liste des tableaux

Tableau 1 : Caractéristiques nucléaires des radioisotopes naturels de l'uranium	16
Tableau 2 : Caractéristiques nucléaires des radioisotopes naturels du thorium	17
Tableau 3 : Données de la littérature sur la concentration des radioéléments dans les sols de la localité de Lolodorf.....	31
Tableau 4 : Données de la littérature sur la concentration des radioéléments dans les roches de la localité de Lolodorf.....	32
Tableau 5 : Concentrations du ^{40}K , du ^{226}Ra et du ^{228}Ra dans certaines cultures vivrières.....	32
Tableau 6 : Facteurs de transfert sol-plante de l' ^{238}U et du ^{232}Th pour certains végétaux.	32
Tableau 7 : Masses des échantillons de fougère prélevés	39
Tableau 8 : Caractéristiques de la source standard utilisée pour la détermination de l'efficacité des détecteurs	57
Tableau 9 : traceurs utilisés pour les différents radionucléides	58
Tableau 10 : facteurs de conversion de l'activité en masse des radioisotopes naturels de l'uranium	62
Tableau 11 : Efficacité des détecteurs utilisés pour la spectrométrie α	68
Tableau 12 : Valeurs moyennes des rendements chimiques.....	69
Tableau 13 : Concentration du ^{210}Po dans les sols.....	70
Tableau 14 : Concentrations d'activité et concentration massique des radioisotopes α de l'uranium dans les sols des deux localités.....	71
Tableau 15 : Rapport massique entre les différents isotopes de U (kg/kg)	72
Tableau 16 : Concentration du thorium naturel dans les sols des deux localités.....	73
Tableau 17 : Concentration d'activité du ^{226}Ra dans les sols	74
Tableau 18 : Concentration d'activité du ^{210}Po dans la fougère.....	76
Tableau 19 : Concentrations d'activité de ^{238}U , ^{235}U et ^{234}U dans la fougère	77
Tableau 20 : Concentrations d'activité du ^{232}Th , ^{230}Th et ^{228}Th dans la fougère	79
Tableau 21 : Concentration d'activité du ^{226}Ra dans la fougère	80
Tableau 22 : Facteur de transfert sol-fougère (en kg/kg de masse sèche) en chaque point d'échantillonnage et pour chaque radioélément étudié.....	83
Tableau 23 : Débit de dose gamma absorbée dans l'air et dose efficace annuelle dues à la concentration des radioéléments dans le sol	84
Tableau 24 : Calcul des indices de risque radiologique H_{ex} et H_{in}	84
Tableau 25 : Concentrations moyennes d'activité (en Bq.kg^{-1}) des radioéléments naturels dans les sols dans différentes régions.	89

INTRODUCTION GENERALE

INTRODUCTION GENERALE

Depuis quelques décennies, l'étude de la radioactivité naturelle devient un sujet préoccupant du point de vue de la radioprotection. Parmi les sources naturelles d'exposition aux rayonnements ionisants, figure en bonne place le rayonnement tellurique qui a pour source principale la concentration des radioéléments naturels dans les sols.

A l'échelle mondiale, la Commission Scientifique des Nations Unies sur les Effets des Rayonnements Atomiques (UNSCEAR) fournit les valeurs moyennes suivantes dans son rapport de 2008 : 1,26mSv/an pour le radon, 0,48 mSv/an pour l'exposition tellurique due aux roches, 0,29mSv/an pour l'exposition interne et 0,39mSv/an pour le rayonnement cosmique. Une forte concentration des radioéléments naturels dans l'environnement présente des risques radiologiques pour l'homme qui y vit avec des conséquences telles que : les lésions rénales, les mutations génétiques, le cancer de la vessie et des reins, la leucémie, le cancer des testicules, le cancer du poumon, etc. (*Guogang et al., 2009 ; Veronique et al., 2005; Meinrath et al., 2003*).

La prévention des risques radiologiques liés à la radioactivité environnementale passe par la maîtrise de la teneur en radioéléments des échantillons environnementaux que sont les sols, les eaux, les végétaux et l'air. La plupart des études menées à travers le monde a porté sur la détermination de la concentration d'activité des radioéléments naturels dans les différents échantillons environnementaux, l'estimation de la dose efficace due au rayonnement ambiant, le transfert sol-plante des radioéléments naturels, etc.

La radioactivité naturelle provient principalement des radioéléments naturels que sont le ^{40}K et les radioisotopes des familles radioactives naturelles de l' ^{235}U , de l' ^{238}U et du ^{232}Th . Ces radioéléments sont présents à l'état de traces dans toutes les roches et dans les formations de base dont les concentrations varient dans une large gamme dans différents contextes géologiques (*Patra et al., 2013*). Une attention particulière est mise autour des zones uranifères et des mines d'uranium où la

concentration en radioéléments naturels est supposée être importante.

Les études de prospection minière menées au Cameroun depuis 1960 ont révélé l'existence de plusieurs sites uranifères. Plus d'une vingtaine de permis d'exploration ont été délivrés à cet effet à près de huit compagnies d'exploration minière. Les plus importants sites reconnus sont : le site de **Kitongo** à Poli dans la région du Nord et le site de **Lolodorf** dans la région du Sud. Les réserves probables de ces deux sites sont respectivement estimées à 13125 tonnes et 11000 tonnes (*Site d'information du Ministère des Mines, 2011*). Dans les années 1985, le Bureau de Recherche Géologique et Minière (BRGM) a mené une étude radiologique et géologique de la localité de Lolodorf, laquelle a révélé des indices relatifs à la présence du ^{40}K et du minerai uranifère. L'aspect géologique de cette étude a montré la présence de la syénite qui est une roche magmatique plutonique grenue. Comme les roches granitiques, les syénites présentent des niveaux élevés de radioactivité et contiennent d'importantes quantités d'uranium, de thorium et leurs descendants (Maurizot et al., 1986).

Depuis près d'une décennie, les deux localités sus-évoquées font l'objet d'une attention particulière par les scientifiques camerounais dans le domaine des sciences et techniques nucléaires (Mvondo et al., 2017, *Beyala et al., 2010, Ele-Abiama et al., 2010 ; Saïdou et al., 2008*). C'est ainsi que depuis 2000, plusieurs études basées sur l'analyse par spectrométrie gamma des échantillons de solss, de roches et des végétaux ont été effectuées dans la localité de Lolodorf (*Beyala et al., 2010, Ele-Abiama et al., 2010 ; Saïdou et al., 2008*). Ces analyses ont permis d'estimer les niveaux de concentration d'activité des radioéléments naturels tels que : ^{40}K , ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th et ^{226}Ra , ^{232}Th . Un regard a été aussi porté sur l'évaluation de la dose efficace annuelle moyenne chez les populations (*Ele-Abiama et al., 2011*). A partir des concentrations d'activité des radioéléments dans les sols et les plantes, il a été aussi question d'évaluer le transfert sol-plante de certains radioéléments tels que ^{238}U et le ^{232}Th (*Ben-Bolie et al., 2013*).

Le présent travail de thèse, est une contribution à l'étude de la radioactivité

environnementale de la localité de Lolodorf. Il consiste à effectuer une analyse par spectrométrie α des échantillons de sols et de fougère (*Filicophyta*) collectés dans les villages de Melondo et Ngombas de cette localité et ses environs en vue de déterminer la concentration des radioéléments naturels émetteurs α que sont : ^{238}U , ^{234}U , ^{235}U , le ^{232}Th , le ^{230}Th , le ^{228}Th , le ^{226}Ra et le ^{210}Po .

Les analyses ont été effectuées dans le Laboratoire de radioactivité environnementale de l'Institut des Sciences et Techniques Nucléaires (ISTN) de Lisbonne-Portugal.

Le travail comporte trois chapitres:

- Le premier chapitre fait une revue de la littérature sur la radioactivité naturelle, la spectrométrie α et l'état radiologique de la zone d'étude ;
- Le deuxième chapitre présente la méthodologie et le matériel utilisés dans le cadre de cette étude allant de la collecte des échantillons jusqu'à l'analyse ;
- Le troisième chapitre est consacré à la présentation, l'analyse et la discussion des résultats obtenus.

CHAPITRE 1 :
REVUE DE LA LITTERATURE SUR LA
RADIOACTIVITE NATURELLE A ET SUR
LA ZONE D'ETUDE

CHAPITRE 1 : REVUE DE LA LITTÉRATURE SUR LES ELEMENTS RADIOACTIFS NATURELS EMETTEURS α ET SUR L'ETAT RADIOLOGIQUE DE LA ZONE D'ETUDE

Notre étude se fonde sur les notions telles que : la radioactivité α , les familles radioactives naturelles, la détection des rayonnements α , la concentration des radioéléments dans l'environnement. Dans ce chapitre consacré à la revue de la littérature, nous faisons un tour d'horizon sur chacune de ces notions dans le but de mieux comprendre le fondement théorique de notre étude et nous présentons de façon sommaire l'état radiologique de la localité de Lolodorf et ses environs.

1.1. Généralités sur la radioactivité et les matières radioactives naturelles émetteurs α

La radioactivité est un phénomène naturel par lequel un atome instable (radioisotope) se transforme spontanément en un autre atome plus stable avec émissions des particules telles que :

- α qui sont noyaux d'hélium (4_2He) ;
- beta (-) qui sont des électrons (${}^0_{-1}e$)
- béta (+) qui sont des positrons (${}^0_{+1}e$)
- gamma qui sont des photons (${}^0_0\gamma$)

La radioactivité a été découverte, il y a un peu plus d'un siècle, en 1896, par le physicien français Henri Becquerel. Ce dernier cherchait à savoir si les rayons qu'émettaient les sels fluorescents d'uranium étaient les mêmes que les rayons X découverts en 1895 par Wilhelm Roentgen, physicien allemand. Il pensait que les sels d'uranium, après avoir été excités par la lumière, émettaient ces rayons X. Mais, il observa que le film photographique est impressionné même sans avoir été exposé à la lumière du soleil. Il en conclut que l'uranium émettait spontanément et sans s'épuiser des rayonnements invisibles, différents des rayons X.

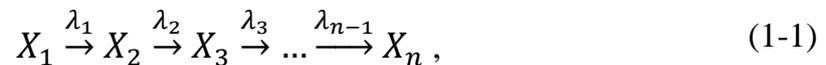
La radioactivité naturelle émane de la présence dans l'environnement des matières radioactives naturelles (MRN). Les matières radioactives naturelles sont

constituées essentiellement des radioisotopes tels que le potassium-40 et ceux des familles radioactives naturelles de l'uranium et du thorium.

1.1.1. Filiation et famille radioactives - Equilibre radioactif

1.1.1.1. Filiation radioactive et famille radioactive

Une **filiation radioactive** encore appelée "série de décroissance radioactive" ou encore "décroissance multiple" est par définition la stabilisation d'un **noyau père** en une succession de désintégrations. Dans une filiation radioactive, un noyau père se désintègre pour donner un noyau fils qui à son tour se désintègre pour donner un autre et ainsi de suite jusqu'à l'obtention d'un noyau stable (non radioactif). On note de façon générale :



où λ_i représente la probabilité pour qu'un noyau X_i se désintègre ; il est appelé constante radioactive du radionucléide X_i .

L'ensemble des radioisotopes intervenant dans une filiation forme **une famille radioactive**.

1.1.1.2. Equilibres radioactifs

a) Cas d'une série de deux désintégrations

Dans le cas d'une série de deux désintégrations :



X_1 est l'élément de départ avec un nombre initial de noyaux ou population initiale $N_1(0)$. A chaque instant t , on a :

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \text{ soit } N_1(t) = N_1(0)e^{-\lambda_1 t}. \quad (1-3)$$

La variation par unité de temps du nombre de noyaux $N_2(t)$ du radionucléide intermédiaire X_2 est égale au nombre de noyaux formés par désintégration de X_1 moins le nombre de noyaux de X_2 désintégrés avec la probabilité λ_2 , soit :

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2. \quad (1-4)$$

L'équation (1-4) permet de déterminer la population $N_2(t)$ à l'instant t :

$$N_2(t) = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1(0) [e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}]. \quad (1-5)$$

Connaissant $N_2(t)$, on déduit aisément $N_3(t)$. La figure 1 montre l'allure des variations de $N_1(t)$, $N_2(t)$ et $N_3(t)$.

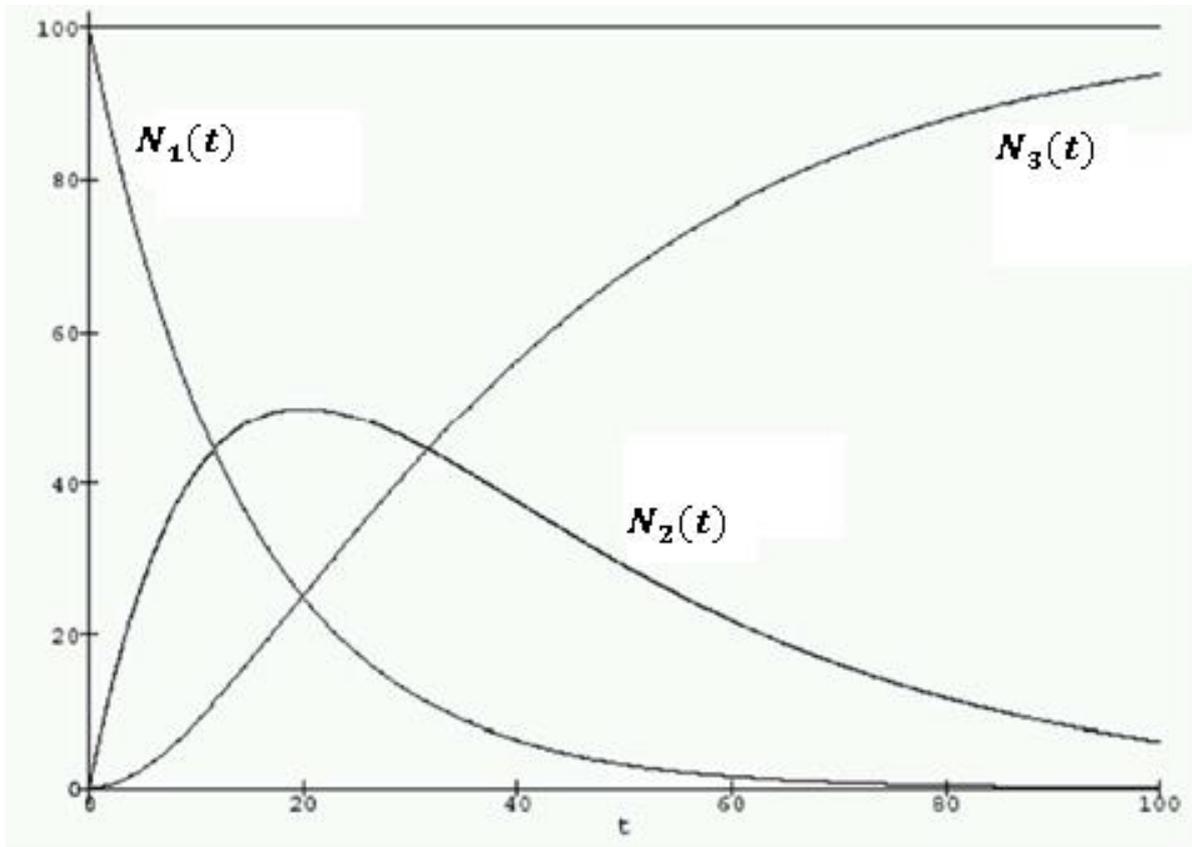


Figure 1 : allure des variations dans le temps de la population de chaque élément de la filiation dans le cas de deux désintégrations successives.

L'équilibre radioactif est atteint lorsque la variation du nombre de noyaux de X_2 dans le temps est nulle, soit :

$$\frac{dN_2}{dt} = 0 ; \quad (1-6)$$

Ce qui revient à :

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2. \quad (1-7)$$

A l'équilibre radioactif, les activités des radioéléments en filiation sont égales. Le temps t^* nécessaire pour atteindre cet équilibre est obtenu en résolvant l'équation (1-7). Soit :

$$t^* = \frac{\ln\left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)}{\lambda_1 - \lambda_2}. \quad (1-8)$$

On définit la période ou demi-vie T_i du radionucléide X_i comme étant la durée au bout de laquelle la population de X_i présente à un instant initial aura diminué de moitié, soit :

$$T_i = \frac{\ln 2}{\lambda_i} \quad (1-9)$$

La relation (1-9) combinée à (1-8) conduit à :

$$t^* = \frac{T_1 T_2}{(T_1 - T_2) \ln 2} \ln\left(\frac{T_1}{T_2}\right). \quad (1-10)$$

On distingue deux types d'équilibre : l'équilibre séculaire et l'équilibre transitoire.

i) Equilibre séculaire

L'équilibre séculaire est atteint si la demi-vie du noyau père est beaucoup plus grande que celle du noyau fils, soit $T_1 \gg T_2$. En d'autres termes, la décroissance du noyau père est négligeable. Ce qui conduit à :

$$A_2(t) = A_1(t). \quad (1-11)$$

En équilibre séculaire, les activités du noyau père et du noyau fils sont égales.

ii) Equilibre transitoire

L'équilibre transitoire est atteint si la demi-vie du père est plus grande que celle du fils, mais pas négligeable, soit $T_1 > T_2$. Ce qui conduit après un temps suffisamment long à :

$$A_2(t) = \frac{T_1}{T_1 - T_2} A_1(t). \quad (1-12)$$

La relation (1-12) montre que les activités des deux noyaux sont proportionnelles. La constante de proportionnalité, le terme $\frac{T_1}{T_1 - T_2}$ est positif et supérieur à 1, donc :

L'activité du noyau père est supérieure à celle du noyau fils.

$$A_2(t) > A_1(t). \quad (1-13)$$

b) Cas général

Dans le cas où on a une filiation à plus de deux désintégrations, on examine le problème de proche en proche de la manière suivante :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \\ \frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3 \\ \vdots \\ \frac{dN_n}{dt} = \lambda_{n-1} N_{n-1} - \lambda_n N_n \end{array} \right. \quad (1-14)$$

Les solutions de l'équation (1-14) peuvent se mettre sous la forme :

$$\left\{ \begin{array}{l} N_2(t) = N_1(0)[a_2^1 e^{-\lambda_1 t} + a_2^2 e^{-\lambda_2 t}] \\ N_3(t) = N_1(0)[a_3^1 e^{-\lambda_1 t} + a_3^2 e^{-\lambda_2 t} + a_3^3 e^{-\lambda_3 t}] \\ \vdots \\ N_p(t) = N_1(0)[\sum_1^p a_p^i e^{-\lambda_i t}] \end{array} \right. , \quad (1-15)$$

avec :

$$a_p^i = \frac{\prod_1^p \lambda_i}{\prod_{i \neq j=1}^p (\lambda_i - \lambda_j)} \quad (1-16)$$

1.1.2. Les familles radioactives naturelles

Les nombres de masse des radioisotopes d'une famille radioactive naturelle forment une suite de terme général $4n + b$, où b est un entier. Ainsi, il existe quatre familles naturelles de désintégration radioactive :

- La famille $4n+3$ ou famille de l'uranium-235 (^{235}U ; $T=7 \times 10^8$ ans) ;
- La famille $4n+2$ ou famille de l'uranium-238 (^{238}U ; $T=4,47 \times 10^9$ ans) ;
- La famille $4n+1$ ou famille du neptunium-237 (^{237}Np ; $T=2,14 \times 10^6$ ans) ;
- La famille $4n$ ou famille du thorium-232 (^{232}Th ; $T=14 \times 10^9$ ans).

De nos jours, la famille naturelle du ^{237}Np a disparu car la période radioactive du père et celle de tous les autres radioisotopes de la chaîne sont très petites devant l'âge de la Terre qui est d'environ 4 milliards d'années (4×10^9 ans).

1.1.2.1. La famille de l'uranium-238

La famille de ^{238}U (fig.2) a la plus longue filiation radioactive. Elle fait intervenir 15 éléments dont le stable est ^{206}Pb (Fig. 2). ^{238}U qui est le père de cette famille, a une période radioactive $T = 4,47 \cdot 10^9$ ans qui est de l'ordre de l'âge de la Terre et est le constituant principal de l'uranium naturel avec une abondance de 99,27%. Les autres radionucléides émetteurs α de cette chaîne sont : ^{234}U ($T = 2,46 \times 10^5$ a), ^{230}Th ($T = 7,54 \times 10^4$ a), ^{226}Ra ($T = 1,6 \times 10^4$ a), ^{222}Rn ($T = 3,825$ j), ^{218}Po ($T = 3,05$ min), ^{214}Pb ($T = 26,8$ min), ^{214}Po ($T = 1,65 \times 10^{-4}$ s) et ^{210}Po ($T = 138$ j). Le ^{218}Po , le ^{214}Pb et le ^{214}Po ont des périodes négligeables par rapport aux autres émetteurs α de cette chaîne, il est donc difficile de les détecter à l'équilibre séculaire. On comprend dès lors pourquoi on ne s'intéresse pas à eux lors d'une étude de la radioactivité environnementale par spectrométrie α .

1.1.2.2. La famille de l'uranium-235

La famille de ^{235}U (fig.3) comporte 12 éléments dont le stable est ^{207}Pb (Fig. 3). ^{235}U qui est le père est le seul émetteur α de cette famille qui a une période élevée (proche de l'âge de la terre). Les autres émetteurs α de la chaîne sont : le ^{231}Pa ($T = 3,27 \times 10^4$ ans) ; le ^{227}Th ($T = 18,7$ jours) ; le ^{223}Ra ($T = 11,4$ jours) ; le ^{219}Rn ($T = 4$ s) ; le ^{215}Po ($T = 1,8 \times 10^{-3}$ s) et le ^{211}Bi ($T = 2,14$ minutes). L'étude de cette chaîne ne présente pas un grand intérêt du point de vue radioprotection parce que le risque associé est minime.

1.1.2.3. La famille du thorium-232

La famille du ^{232}Th (fig.4) subsiste encore dans la nature en raison de la longue vie du père ^{232}Th ($T = 1,41 \times 10^{10}$ ans) qui représente environ trois fois l'âge de la Terre. Elle comporte 12 éléments dont le stable est ^{208}Pb (Fig. 4). Les émetteurs α de cette famille sont : le ^{232}Th ($T = 1,41 \times 10^{10}$ a), le ^{228}Th ($T = 1,91$ a), le ^{224}Ra ($T = 3,65$ a), le ^{220}Rn ($T = 0,93$ min), le ^{216}Po ($T = 146$ ms), et le ^{212}Po ($T = 299$ ns).

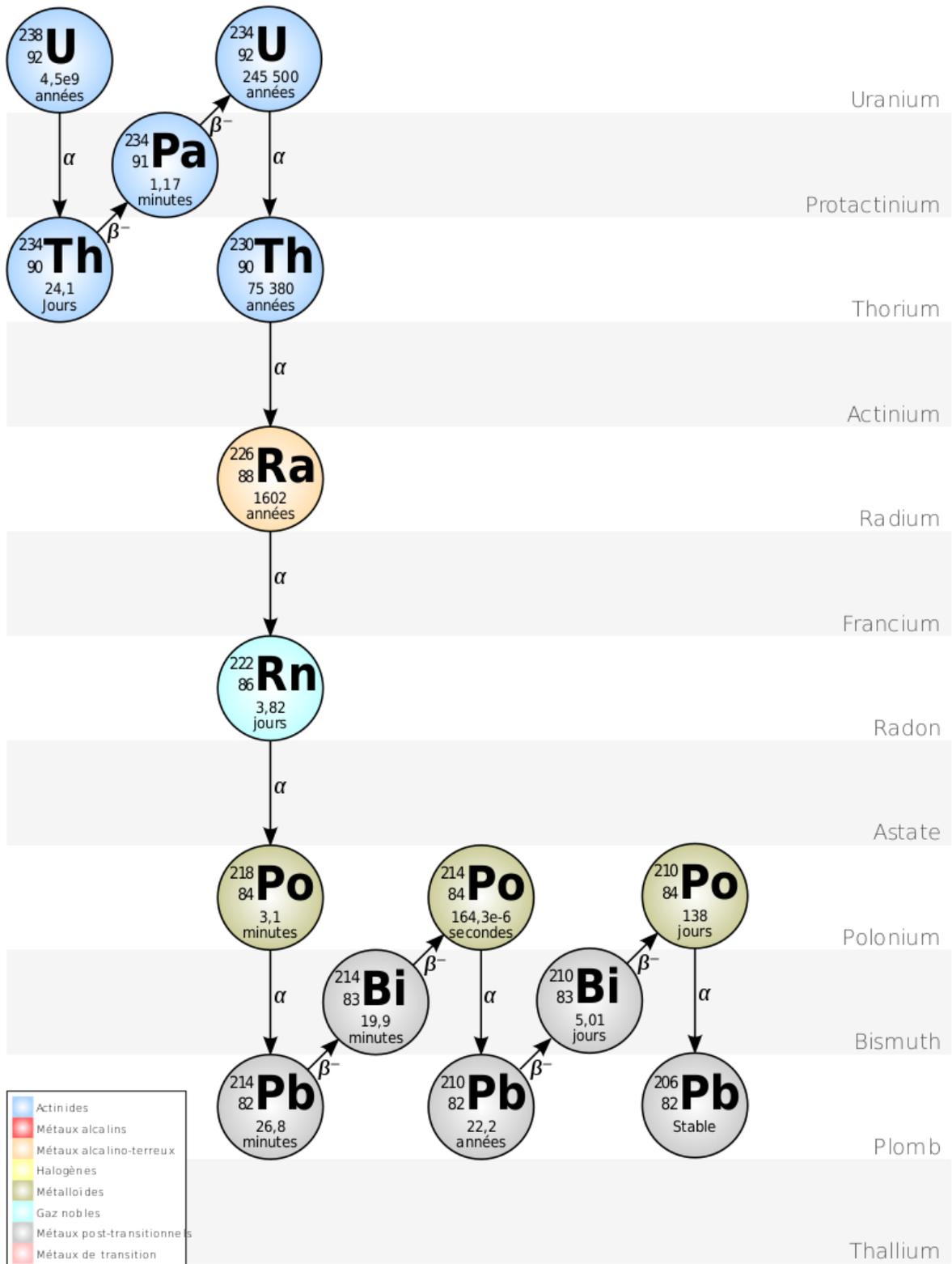


Figure 2 : famille radioactive de l'uranium-238

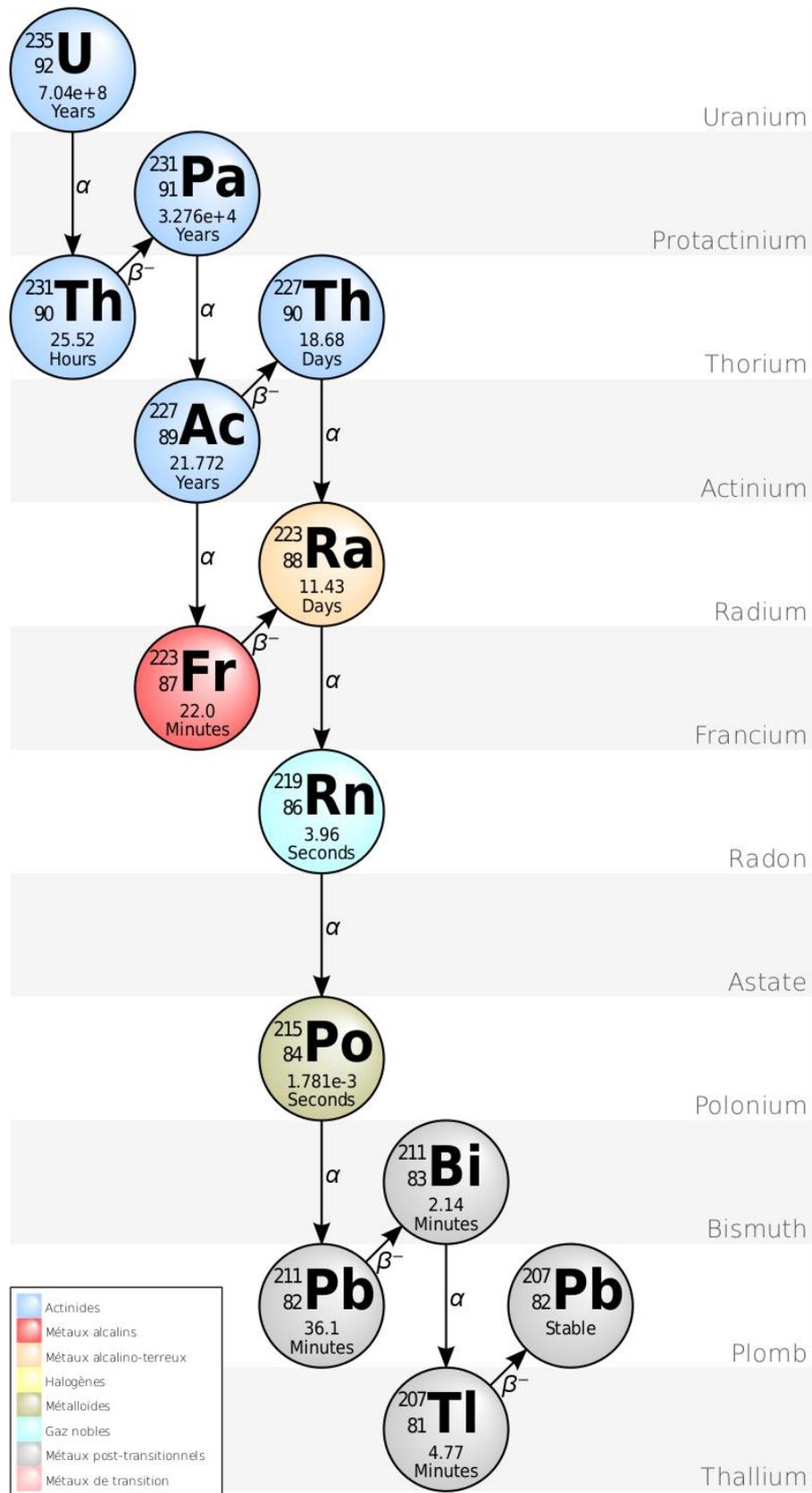


Figure3 : Famille radioactive de l'uranium-235

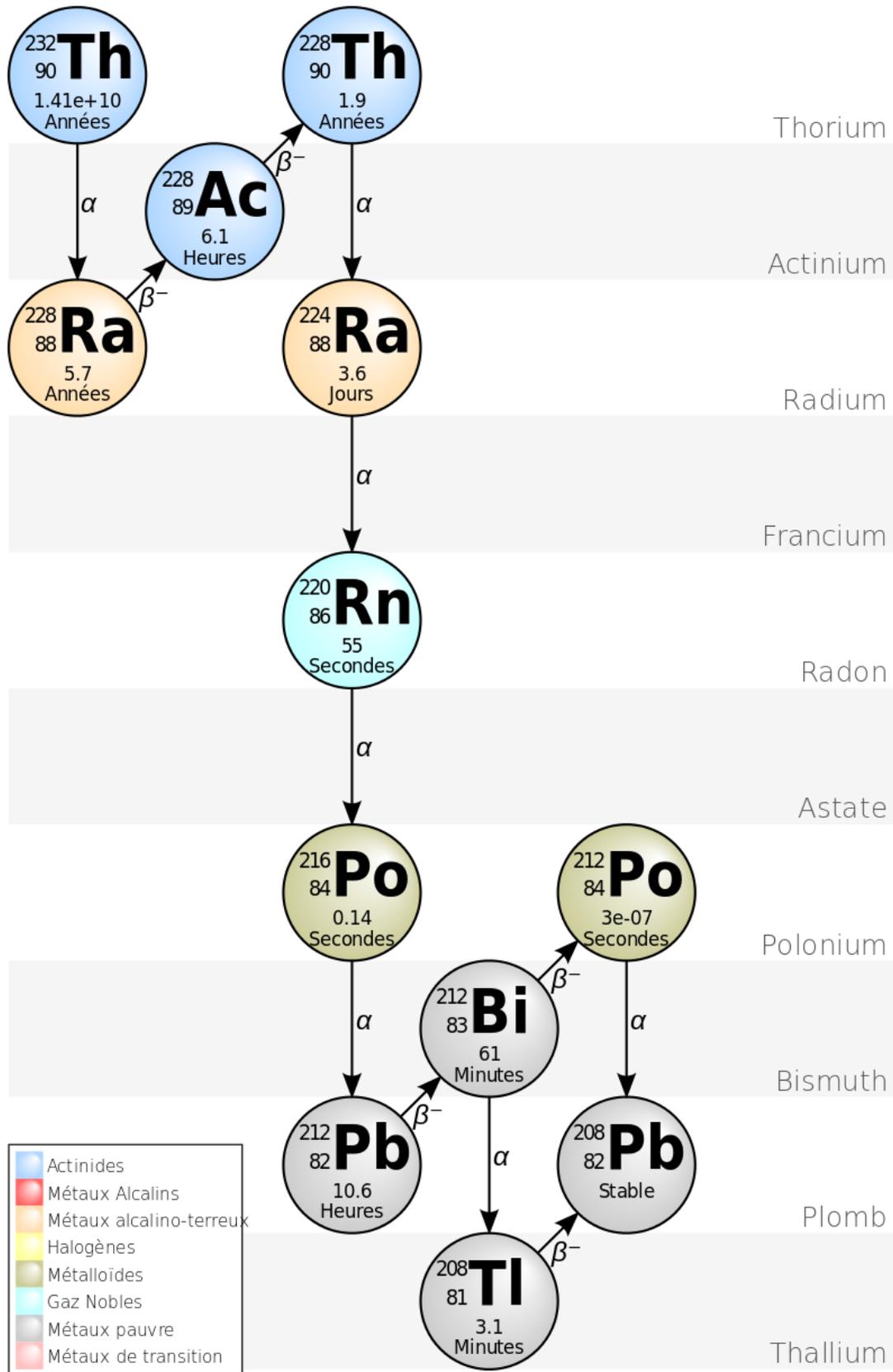


Figure 4 : Famille radioactive du thorium-232

1.1.3. Propriétés chimiques et nucléaires des radioéléments naturels émetteurs α

1.1.3.1. L'uranium naturel

L'uranium est l'élément chimique naturel le plus lourd. Il a été découvert en 1789 dans la pechblende, par le chimiste allemand Martin Klaproth, qui le nomma ainsi en référence à la planète Uranus. Il a été isolé pour la première fois à l'état métallique en 1841, soit 52 ans plus tard par le chimiste français Eugène Peligot. C'est sur l'uranium que fut découverte la radioactivité en 1896, par le physicien français Henri Becquerel. Les recherches qui suivirent l'expérience de Becquerel conduisirent à la découverte du radium et à celle de nouveaux concepts sur l'organisation atomique (CEA, 2001).

Dans la nature, l'uranium est combiné à des roches telles que le granite, le phosphate, etc. formant ainsi une roche uranifère (Fig. 5).



Figure5 : Roches uranifères

L'uranium naturel possède trois principaux isotopes que sont : ^{234}U (0,0057 %), ^{235}U (0,719 %) et ^{238}U (99,275 %). Les caractéristiques nucléaires de ces radioisotopes sont présentées dans le Tableau1.

Tableau 1 : Caractéristiques nucléaires des radioisotopes naturels de l'uranium

Radioisotope	Période (ans)	Activité massique (Bq/g)	Emissions α (Energie en MeV ; rendement en %)
^{238}U	$4,47 \times 10^9$	$1,24 \times 10^4$	(4,198 ; 76,8); (4,150 ; 23)
^{235}U	$7,13 \times 10^8$	8×10^4	α : (4,396 ; 58) ; (4,368 ; 15,8)
^{234}U	$2,46 \times 10^5$	$2,30 \times 10^8$	α : (4,775 ; 71,4) ; (4,723 ; 28,4)

Dans la lithosphère, la teneur moyenne en uranium est de 3 à 4 mg/kg mais l'éventail est très large selon les matériaux. Les teneurs en uranium (mg/kg) sont de l'ordre de 1 à 13 pour les schistes, de 1 à 80 dans les schistes carburés, de 3 à 27 dans les bauxites, de 0,1 à 9 dans les roches carbonatées, de 1 à 350 dans les phosphates (CEA, 2001).

Les bruits de fond en uranium total sont fonction de la géochimie du milieu et s'étendent de 5 à 1000 Bq/kg, les valeurs les plus faibles correspondant à des roches de type sédimentaires et les plus fortes à des schistes (*Choppin and Wong, 1998*).

1.1.3.2. Le thorium naturel

Le thorium est un métal, dont certaines propriétés physiques et chimiques sont proches de celles du titane, du cérium ou du plutonium. Il est réputé avoir la même toxicité chimique que l'uranium, mais une radiotoxicité supérieure à cause de ses descendants émetteurs α et béta (*Lung, 1997*). En solution, le thorium n'existe qu'au degré d'oxydation +IV et présente une chimie qualitativement proche de celle des actinides tétravalents comme le Pu^{4+} (*Choppin et Wong, 1998*).

Les caractéristiques nucléaires des principaux radioisotopes du thorium présents dans les chaînes naturelles de ^{238}U et du ^{232}Th sont présentées dans le Tableau 2.

Tableau 2 : Caractéristiques nucléaires des radioisotopes naturels du thorium

Radioisotope	Période (ans)	Activité massique (Bq/g)	Emissions α (Energie en MeV ; rendement en %)
^{232}Th	$1,4 \times 10^{10}$	$4,08 \times 10^3$	α :(4,010; 77); (3,950 ; 23)
^{230}Th	$7,54 \times 10^4$	$7,64 \times 10^8$	α :(4,770;100)
^{228}Th	1,9116	$3,04 \times 10^{13}$	α :(5,520 ; 100)

Le thorium est 3 à 4 fois plus abondant que l'uranium dans la croûte terrestre. Sa teneur moyenne est de 9 à 12 g/t dans le sol, soit une concentration d'activité comprise entre 25 et 28 Bq/kg de sol en moyenne, les valeurs extrêmes allant de 5 à 190 Bq/kg de sol. Le ^{232}Th est présent dans les granites (48 Bq/kg), dans les basaltes (37 Bq/kg), dans les schistes (6 Bq/kg), dans les roches sédimentaires (5 à 26 Bq/kg), et plus particulièrement dans les carbonates, les phosphates, les silicates et les oxydes (*Choppin et al., 1998*).

1.1.3.3. Le Polonium naturel

Le polonium est un métal du groupe VI du tableau périodique. Il possède plusieurs états d'oxydation : -I, +II, +IV, +VI. Il possède 29 isotopes connus dont les nombres de masse varient de 190 à 218, tous radioactifs. Sept d'entre eux sont présents dans les trois familles radioactives naturelles. Le plus abondant est le ^{210}Po émetteur α de période radioactive de 138,4 jours qui appartient à la famille de l' ^{238}U . Les autres radioisotopes du polonium appartenant à cette famille sont : le ^{218}Po et le ^{214}Po . Le Tableau 3 présente leurs caractéristiques nucléaires.

Tableau 3 : caractéristiques nucléaires des principaux radioisotopes du polonium

Radioisotope	Période	Activité massique (Bq/g)	Emissions α (Energie en MeV ; rendement en %)
^{210}Po	138,4 j	$1,66 \times 10^{14}$	α : (5,304 ; 100)
^{214}Po	$1,65 \times 10^{-4}\text{s}$	$1,18 \times 10^{25}$	α : (7,687; 99,90)
^{218}Po	3,05 min	$1,05 \times 10^{19}$	α : (6,003 ; 99,9)

Dans l'écorce terrestre, le ^{210}Po se trouve à l'équilibre avec le ^{210}Pb , à un

niveau voisin de quelques dizaines de Bq/kg, alors qu'en surface du sol, la concentration d'activité est plus élevée. La concentration d'activité du ^{210}Po présent dans les sols varie de plusieurs ordres de grandeur, en fonction de la localisation géographique du sol, de sa nature et de la profondeur considérée. Elle varie entre 10 et 200 Bq/kg sol sec. Ces valeurs sont très fortement influencées par la présence d'activités «génératrices » de polonium, particulièrement à proximité des sites de stockage des résidus d'extraction des mines d'uranium, où la concentration d'activité du ^{210}Po peut atteindre 15000 à 22000 Bq/kg de sol sec (*Lapham et al., 1989 ; Thomas, 2000*).

La concentration d'activité du ^{210}Po dans les profils de sol présente systématiquement une valeur plus élevée en surface (environ 0 –10 cm) qu'en profondeur, ce qui montre l'importance des retombées atmosphériques.

1.1.3.4. Le radium naturel

Le radium est un élément chimique du groupe des alcalino-terreux. Conformément à sa position dans le groupe IIa de la classification périodique, la structure électronique du radium est : $[\text{Rn}]7s^2$. C'est l'élément le plus électropositif des métaux alcalino-terreux. Il possède quatre radioisotopes naturels : le ^{223}Ra (T=11,43jours), le ^{224}Ra (T=3,65ans), le ^{226}Ra (T=1,6×10[»]ans) et le ^{228}Ra (T=5,73ans).

^{226}Ra est le plus abondant. Il est émetteur α d'énergies 4,784MeV à 94% et 4,602 à 6%. Il y a une probabilité infime d'émission gamma de 186keV à 3% (*ICRP 67*).

Dans la nature, les sources principales de radium-226 sont les roches et le sol. Son abondance dépend fortement de la teneur en uranium. La concentration d'activité du radium-226 dans les roches ordinaires est de l'ordre de quelques dizaines de Bq/kg mais peut atteindre des valeurs plus de mille fois plus élevées dans des roches riches en minerais d'uranium (*Rapport IRSN, 2010 ; Gambini et Grenier, 1997*).

1.2. Généralités sur la radioactivité α

1.2.1. Définition et propriété

La radioactivité α est un processus naturel au cours duquel un noyau père (A_ZX) émet spontanément un noyau d'hélium (4_2He) appelé particule α pour se transformer en un noyau fils (${}^{A-4}_{Z-2}Y$). L'équation de désintégration α s'écrit :



1.2.2. Bilan énergétique de la désintégration α

Lors d'une désintégration α décrite par l'équation (1-17), la conservation de l'énergie s'écrit :

$$m(X)c^2 = m(Y)c^2 + m(He)c^2 + T_Y + T_\alpha + E^*. \quad (1-18)$$

- $m(X)$ et $m(Y)$ sont respectivement les masses au repos des noyaux père X et fils Y ;
- T_Y et T_α sont respectivement l'énergie de recul du noyau fils Y et l'énergie cinétique de la particule α ;
- E^* est l'énergie d'excitation du noyau fils Y. Si Y est produit à son état fondamental alors $E^* = 0$.

La chaleur produite lors de la désintégration α est donnée par :

$$Q_\alpha = [m(X) - m(Y) - m(He)]c^2. \quad (1-19)$$

Par ailleurs, la conservation de la quantité de mouvement s'écrit :

$$\vec{P}_Y + \vec{P}_\alpha = \vec{0}, \quad (1-20)$$

avec

$$\begin{cases} T_Y = \frac{P_Y^2}{2m(Y)} \\ T_\alpha = \frac{P_\alpha^2}{2m(He)} \end{cases}. \quad (1-21)$$

A partir des Equations (1-19), (1-20) et (1-21), on obtient une nouvelle expression de Q_α sous la forme :

$$Q_\alpha = T_Y + T_\alpha + E^*. \quad (1-22)$$

Une combinaison des équations (1-21) et (1-22) permet d'avoir l'expression suivante de l'énergie cinétique de la particule α :

$$T_{\alpha} = (Q_{\alpha} - E^{*}) \frac{m(Y)}{m(Y)+m(He)}. \quad (1-23)$$

L'expression (1-23) montre que l'énergie des particules alpha d'un noyau donné est constante : on parle alors de raie alpha.

L'énergie des particules α est toujours inférieure à 10 MeV et est voisine de 5 MeV pour la majorité des noyaux. La vitesse associée aux particules α est de l'ordre de 15300km/s, donc « non relativiste ». Ce fait, associé à leur caractéristique de particules chargées ($Z=2$), leur confère un libre parcours moyen faible dans la matière (quelques centimètres dans l'air par exemple).

1.2.3. Condition pour qu'un noyau subisse une désintégration α

Pour qu'il y ait désintégration α , il faut que $Q_{\alpha} > 0$, ceci revient à écrire que :

$$m(X) > m(Y) + m(He). \quad (1-24)$$

En introduisant l'énergie de liaison $B(A, Z)$ d'un noyau A_ZX , (1-24) devient :

$$(A - 4, Z - 2) - B(A, Z) + B(4,2) > 0. \quad (1-25)$$

Sachant que $B(A, Z)$ a pour expression d'après la formule semi-empirique de Bethe-Weizsäcker :

$$B(A, Z) = a_v A - a_{sur} A^{\frac{2}{3}} - a_c \frac{Z^2}{A^{\frac{1}{3}}} - a_{sym} \frac{(N-Z)^2}{A} + \delta(N, Z), \quad (1-26)$$

où:

- $a_v A$ est le terme volumique ;
- $a_{sur} A^{\frac{2}{3}}$ est le terme de surface ;
- $a_c \frac{Z^2}{A^{\frac{1}{3}}}$ est le terme coulombien ;
- $a_{sym} \frac{(N-Z)^2}{A}$ est le terme d'asymétrie ; et
- $\delta(N, Z)$ est le terme d'appariement, il tient compte des spins des nucléons

$$\delta = \begin{cases} \Delta A \text{ si } N \text{ et } Z \text{ sont tous pairs} \\ 0 \text{ si } A \text{ est impaire} \\ -\Delta A \text{ si } N \text{ et } Z \text{ sont tous impairs} \end{cases}$$

Avec $\Delta A = 12A^{\frac{1}{2}}$.

On obtient la condition $A > 150$ qui est nécessaire mais pas suffisante pour qu'un noyau subisse une désintégration α . En fait, la particule α doit en plus franchir la barrière de potentiel constituée par le reste du noyau père, selon une probabilité donnée par le caractère microscopique et donc quantique du système (A,Z).

1.2.4. Théorie quantique de la désintégration α

Dans l'étude quantique de la désintégration α , un noyau père ${}^A_Z X$ qui se désintègre pour donner un noyau fils ${}^{A-4}_{Z-2} Y$ avec émission d'une particule α est considéré comme un puits de potentiel dans lequel les éléments constitutifs (neutrons et protons) sont dans des états énergétiques autorisés. Soit Z le numéro atomique du noyau et R_0 son rayon (demi-largeur du puits). Le noyau fils a pour charge $(Z-2)e$ et a une masse très grande par rapport à celle d'une particule α ; il reste donc au repos lors d'une émission. En dehors du puits ($r > R_0$) la particule α est soumise au potentiel coulombien du noyau. En considérant la fonction d'onde associée à la particule sous la forme $\frac{\phi(r)}{r}$, l'équation de Schrödinger indépendante du temps s'écrit :

$$\frac{d^2\phi}{dr^2} + \frac{2m}{\hbar^2} (E - V(r))\phi = 0. \quad (1-27)$$

Le potentiel $V(r)$ représenté sur la Figure 6 est donné par :

$$V(r) = \begin{cases} -U \text{ si } r < R_0 \\ \frac{KZe^2}{r} \text{ si } r > R_0 \end{cases} \quad (1-28)$$

avec $K = \frac{1}{4\pi\epsilon_0}$.

$V(r)$ est donc discontinu à la surface ($r=R_0$) du noyau de rayon R_0 .

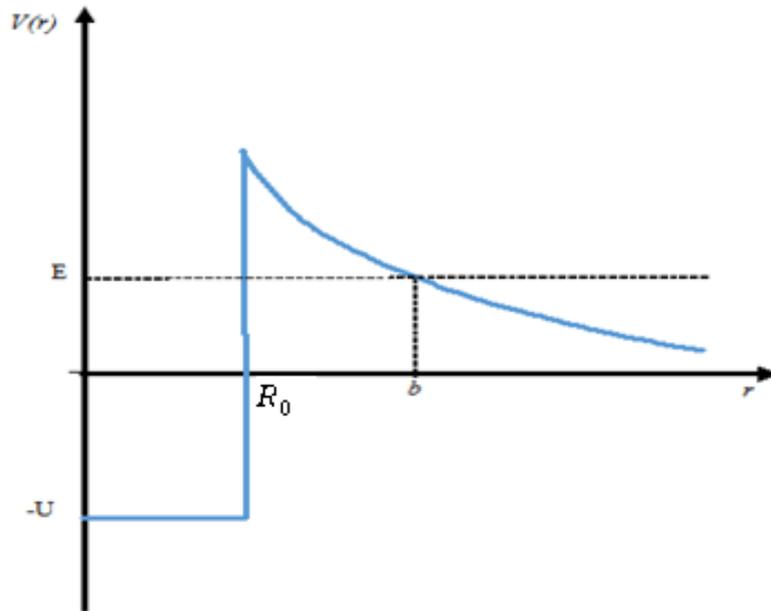


Figure6 : Représentation de la barrière de potentiel nucléaire du noyau

La particule α fait des va-et-vient à l'intérieur du noyau, à une fréquence $v/2R_0$, où v est sa vitesse. Chaque fois qu'elle frappe la paroi, elle tente une percée par effet tunnel. La probabilité de réussite de cette percée est T . Le potentiel étant variable, T est définie comme la transparence logarithmique de la barrière, soit:

$$T = e^{-G}, \quad (1-29)$$

Où le facteur de Gamow G est donnée par :

$$G = 2 \int_{R_0}^b dr \sqrt{2m(V(r) - E)} \quad (1-30)$$

Avec E l'énergie de la particule α et $V(r)$ le potentiel variable.

L'expression de la probabilité d'émission est :

$$\omega = \frac{v}{2R_0} e^{-G} \quad (1-31)$$

En supposant que le moment cinétique orbital est nul et que le potentiel s'annule exactement pour une valeur de r suffisamment grande, la fonction d'onde à la sortie est de la forme :

$$\psi(r) = C \frac{e^{ikr}}{r}, \quad (1-32)$$

avec $k = \sqrt{2mE}$.

Le vecteur densité de courant de probabilité est défini par :

$$\vec{J} = \frac{1}{m} \text{Im} \left(\psi^* \frac{\partial \psi}{\partial r} \right) \vec{e}_r = \frac{k|C|^2}{mr^2} \vec{e}_r. \quad (1-33)$$

Le flux de ce courant de probabilité à travers une sphère de rayon r est la probabilité par unité de temps pour que la particule s'échappe à l'infini. Cette probabilité est donnée par :

$$\omega = \frac{4\pi k}{m} |C|^2. \quad (1-34)$$

Le taux d'émission est donnée par :

$$\omega = \frac{v}{2R} \left(\frac{4kq}{k^2+q^2} \right) \frac{qR}{1+qR} e^{-2ql}; \quad (1-35)$$

Avec $= \sqrt{2mE}$, $q = \sqrt{2m(V_0 - E)}$ et $v = \frac{k}{m}$, V_0 étant la hauteur de la barrière physique et l sa largeur.

En utilisant le potentiel coulombien dans l'Equation (1-29) on obtient :

$$G = 4\sqrt{mZ\alpha b} \cos^{-1} \left(\sqrt{\frac{R}{b}} - \sqrt{\frac{R}{b} - \frac{R^2}{b^2}} \right), \quad (1-36)$$

avec $\alpha = \frac{e^2}{4\pi}$.

R est très petit devant b , qui est la distance d'approche d'une particule α ayant une énergie $E = 1\text{MeV}$. On peut alors poser $\cos^{-1} \left(\sqrt{\frac{R}{b}} \right) \sim \frac{\pi}{2}$. De plus, l'énergie cinétique de la particule α à l'infini est égale à son énergie potentielle au point d'émergence b de la barrière, soit $Q = \frac{2Z\alpha}{b}$. En exprimant b en fonction de l'énergie de la particule α , on trouve donc :

$$G = 2\pi Z\alpha \sqrt{\frac{2m}{Q}} - 4\sqrt{mRZ\alpha}. \quad (1-37)$$

On en déduit le taux d'émission par :

$$\omega = \frac{v}{2R} \exp - \left(2\pi Z\alpha \sqrt{\frac{2m}{Q}} - 4\sqrt{mRZ\alpha} \right). \quad (1-38)$$

L'équation (1-38) montre que le taux d'émission des particules α est lié à l'énergie

Q de la particule α . Ceci confirme la cohérence de la théorie quantique de l'émission α basée sur l'effet tunnel. Cette théorie s'étend dans le cas des particules avec un moment cinétique orbital non nul en considérant $V(r) = \frac{l(l+1)}{2mr^2} + \frac{2Z^2\alpha}{r}$.

1.2.5. La détection du rayonnement α

La détection des particules α découle de leur interaction avec la matière, laquelle se résume au phénomène d'ionisation. En effet, les particules α sont des particules chargées lourdes lesquelles interagissent de façon continue avec la matière et provoquent une ionisation directe. Elles déposent l'énergie au milieu en une seule étape, par le processus d'interaction coulombienne entre la particule incidente et les électrons orbitaux. Cette interaction peut se résumer dans la Figure7.

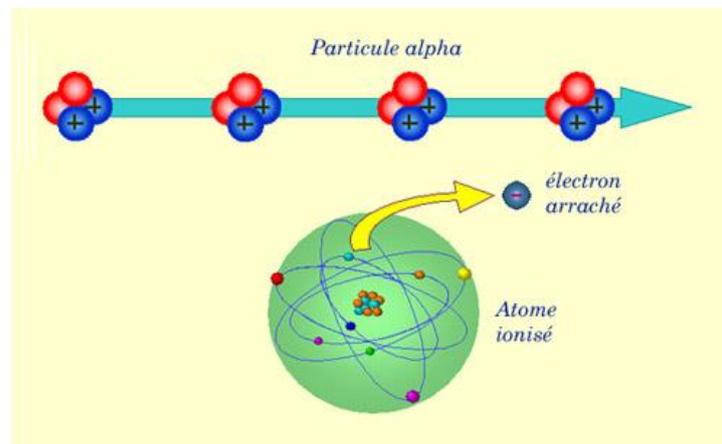


Figure7 : Interaction des particules α avec les atomes de la matière se résumant à la capture par attraction coulombienne des électrons par la particule α .

L'énergie perdue par unité de longueur de pénétration du milieu traversé est donnée par :

$$S = -\frac{dE}{dx} = \frac{8\pi e^2 Z^2 N}{m^2 v^2} \ln \left[\ln \left(\frac{2mv^2}{I_0} \right) - \ln \left(1 - \frac{v^2}{c^2} \right) - \frac{v^2}{c^2} \right], \quad (1-39)$$

où

- N est la densité atomique du milieu ;
- Z est le numéro atomique des atomes du milieu ;

- I_0 est le potentiel d'ionisation moyen des atomes du milieu ;
- m est la masse au repos des particules α ;
- v est la vitesse de la particule.

La Figure8 montre la variation de cette perte en fonction de la distance x parcourue dans le milieu.

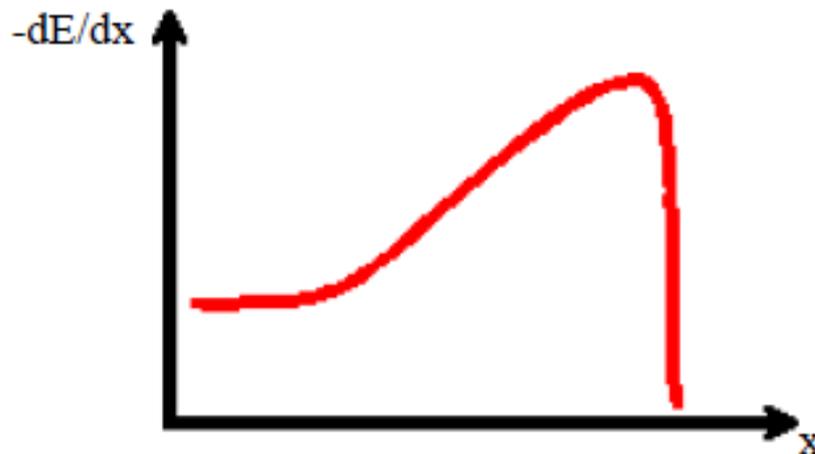


Figure8 : variation de la perte linéique d'énergie en fonction de la distance de pénétration des particules α dans le milieu

Les détecteurs de particules α fonctionnent sur la base de l'interaction de celles-ci avec la matière. De manière générale, une chaîne de détection des rayonnements est constituée de quatre grands ensembles :

- le détecteur ou partie sensible avec laquelle le rayonnement interagit ;
- un système d'amplification qui met en forme et amplifie le signal produit par la sonde ;
- un système de traitement du signal ;
- un système d'affichage qui indique suivant les cas :
 - un flux de particules : le compteur ;
 - l'énergie des particules : le spectromètre ;
 - la dose absorbée ou le débit de dose absorbée : le dosimètre ou le débitmètre.

La Figure 9 montre l'organisation générale d'un dispositif de détection et de mesure

des rayonnements.

Les détecteurs se distinguent par la nature du matériau qui les constitue. Ainsi, on a trois types de détecteur :

- les détecteurs à gaz ;
- les détecteurs à scintillation ;
- les détecteurs à semi-conducteur.

Pour la spectrométrie α de haute résolution, les détecteurs à semi-conducteur sont les plus appropriés et particulièrement les détecteurs à barrière de surface qui utilisent comme semi-conducteur le silicium.

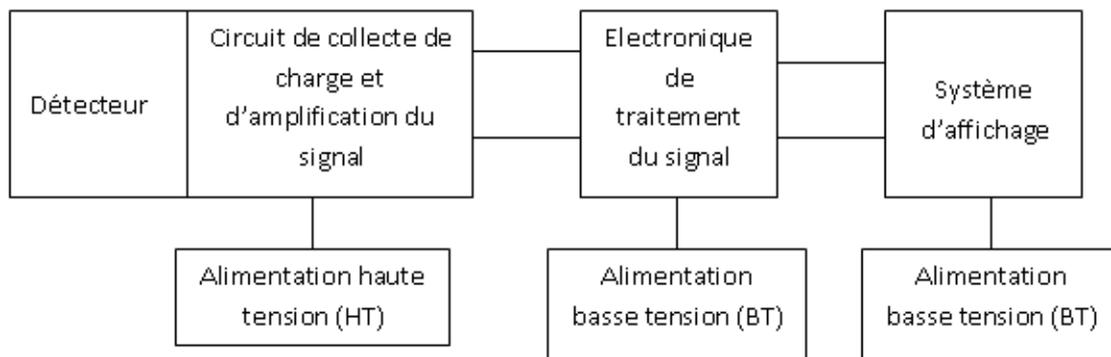


Figure 9 : Organisation générale d'un dispositif de détection et de mesure des rayonnements ionisants

1.2.6. Organisation d'une chaîne spectrométrique α

Une chaîne spectrométrique α a presque la même organisation qu'une chaîne spectrométrique gamma, sauf qu'au regard de la forte atténuation des rayons α par la matière, il faut loger la source et le détecteur α dans une enceinte à vide. Par ailleurs, au niveau des détecteurs, le silicium est approprié pour les rayons α tandis que le germanium l'est pour les rayons gamma. La Figure10 présente poste de spectrométrie α .

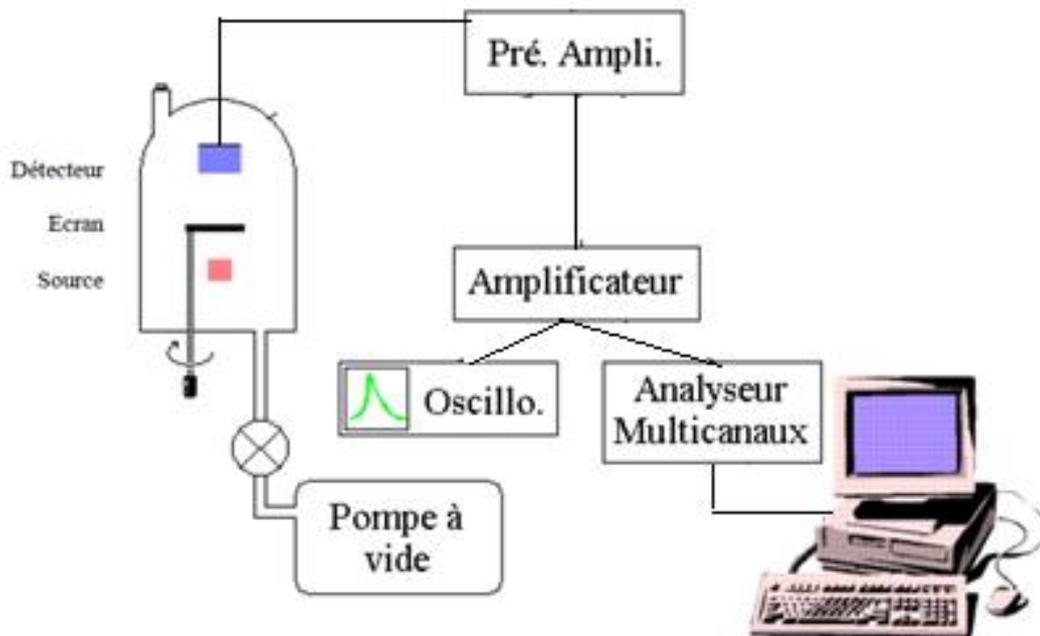


Figure10 : Poste de spectrométrie α

1.2.7. Spectre des énergies α

Le spectre des énergies d'un rayonnement est l'ensemble des énergies qui composent ce rayonnement. Le spectre α d'après l'équation (1-23) est un spectre de raies, c'est-à-dire que toutes les particules ont presque la même énergie (Fig.11).

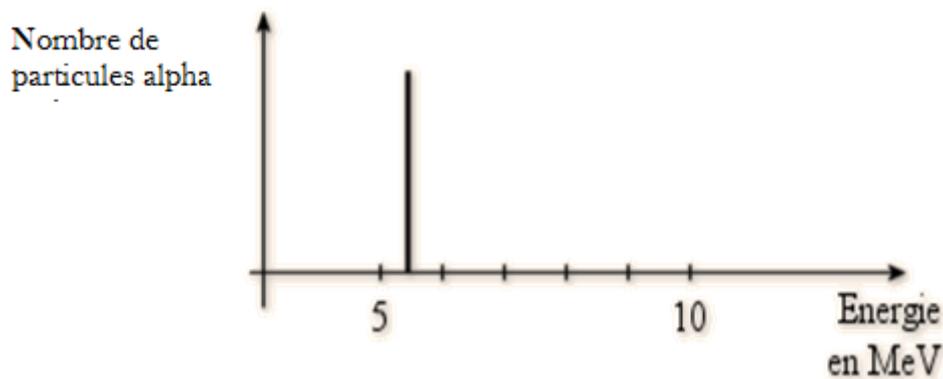


Figure11 : Exemple de spectre de raies

Si le noyau résultant est dans un état excité ($E^* \neq 0$) qui n'est pas métastable, on observe presque simultanément à la désintégration α un rayonnement gamma par désexcitation pour revenir à l'état fondamental. Le schéma de désintégration détaillé

des particules indique alors la probabilité relative de chaque raie et les rayonnements gamma éventuellement associés.

1.3. Analyse par spectrométrie α d'un échantillon environnemental

Faire l'analyse spectrométrique d'un échantillon environnemental revient à déterminer la teneur en radioéléments de cet échantillon. Contrairement à la spectrométrie gamma où l'échantillon traité est directement introduit dans le détecteur dans une géométrie appropriée, la spectrométrie α exige qu'on extrait par des procédés chimiques les radionucléides qu'on désire analyser. Ainsi, après le traitement de l'échantillon, il existe trois étapes principales avant l'obtention du spectre qui sont : l'extraction radiochimique, la déposition ou l'électrodéposition des radioéléments et l'acquisition du spectre α .

1.3.1. Extraction radiochimique

L'extraction radiochimique consiste à extraire par des procédés chimiques les radioéléments contenus dans l'échantillon. Les radioéléments extraits sont dissous dans une solution acide. Le traitement chimique passe en général par :

- la précipitation des matières inorganiques à l'aide d'un mélange approprié d'acides nitrique et chlorhydrique (aqua regia) ;
- la digestion des matières organiques à l'aide de l'acide nitrique concentrée et l'eau oxygénée (H_2O_2) ;
- la séparation chromatographique.

1.3.2. Déposition ou l'électrodéposition

La déposition ou l'électrodéposition consistent à fixer sur un disque le radioélément resté la solution après digestion chimique des matières organiques. La déposition se fait sous agitation magnétique, tandis que l'électrodéposition se fait grâce au courant électrique.

1.3.3. Comptage α

Le comptage α se fait à l'aide d'une chaîne spectrométrique α . Le disque sur lequel est déposé le radioélément est introduit dans la chambre à vide où est logé le

détecteur et on peut observer le spectre par exemple sur un écran d'ordinateur grâce à un logiciel approprié.

1.4. Données sur la localité de Lolodorf

1.4.1. Situation géographique de Lolodorf

L'arrondissement de Lolodorf est situé dans le Département de l'Océan, Région du Sud Cameroun. Il est situé entre Éséka au Nord (à 56 km), Mvengue à l'Est (à 33 km), Akom II au Sud et Bipindi au Sud-Ouest. Il est à 110 km de Kribi (chef lieu de département de l'Océan) et à 76 km d'Ebolowa (chef lieu de la région du Sud). Il est localisée dans une zone de forêt équatoriale de coordonnées moyennes : N : 3°14'' ; E : 10°44''. Il couvre une superficie d'environ 1200km² et compte près de 14 326 habitants vivant essentiellement de l'agriculture.

Les études d'exploration minières menées au Cameroun depuis les indépendances ont montré que la localité de Lolodorf est une zone uranifère. La Figure12 présente la carte uranifère du Cameroun.

1.4.2. Potentiel uranifère de Lolodorf

La localité de Lolodorf couvre l'axe syénitique Akongo-Lolodorf s'étendant sur environ 75 km dans l'ouest de la Région du Sud au Cameroun. Depuis 1960, des études géochimiques menées par le Bureau français de la Recherche Géologique et Minière (BRGM) ont révélé une quinzaine d'anomalies radiométriques identifiées dans les localités de Ngombas, Awanda, Bikoué et Melondo. Les zones d'anomalies radiométriques sont concentrées le long du bassin de la rivière Lokoundje qui dissèque à travers des sources de syénite radioactive (*Ele et al., 2010*). La Figure13 est une carte minière et radiologique de la zone d'étude montrant les localités de Ngombas et Melondo.

Les activités d'exploration minière menée dans ces localité par Mega Uranium qui détient un permis de recherche ont estimé le gisement de Lolodorf à 11000t d'oxyde d'uranium.

La concentration en uranium et en thorium dans les roches et les sols entraîne un débit de rayonnement gamma ambiant élevé (3-10µSv/h) dans certains endroits de cette localité tels que : Ngombas, Awanda, Bikoué, Melondoet Madong (*Ele et*

al., 2010). On dit que ces endroits sont des zones de haute radioactivité naturelle dénommée en anglais « High Background Radiation Area » (HBRA).

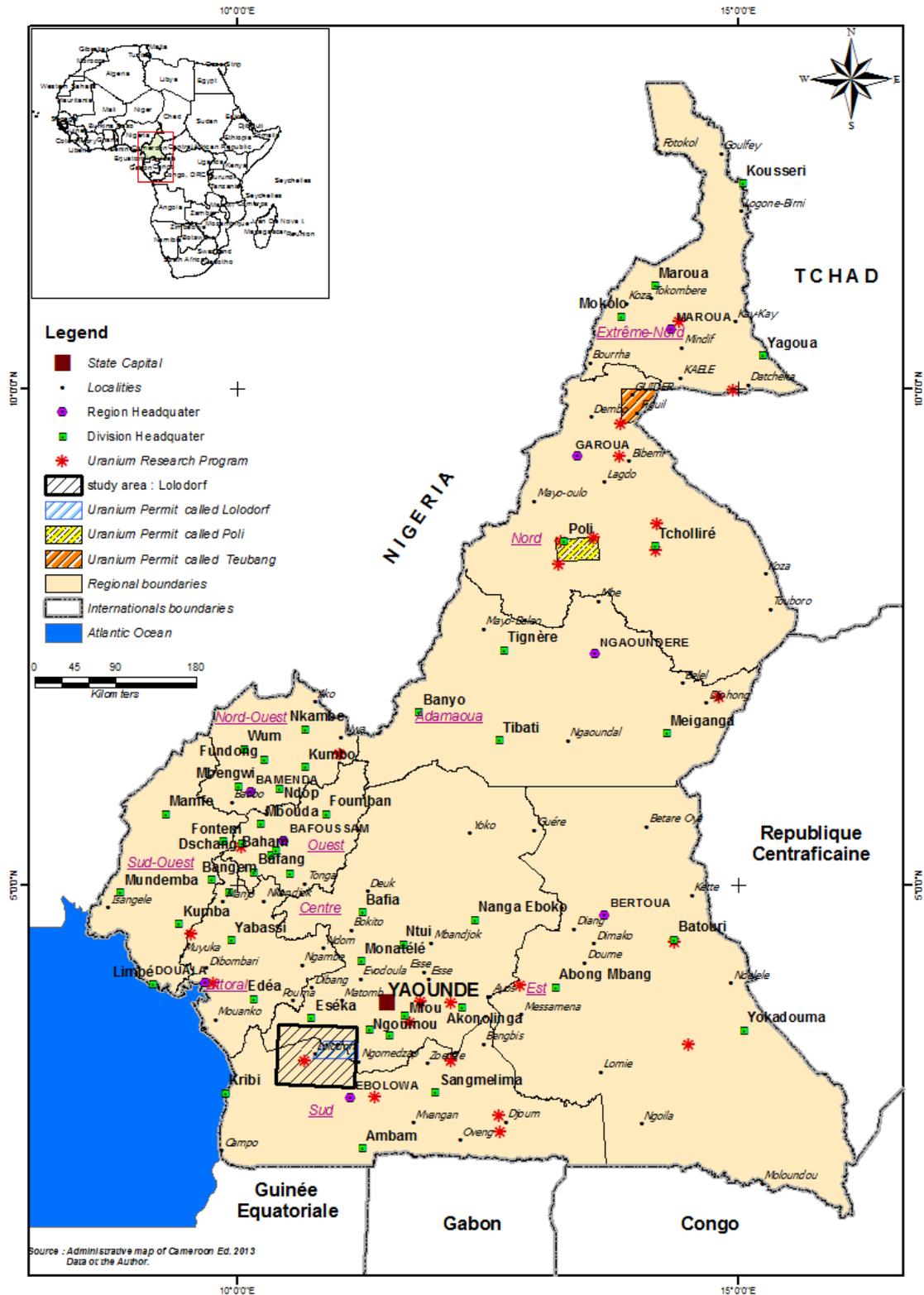


Figure12 : Carte uranifère du Cameroun montrant la localité de Lolodorf

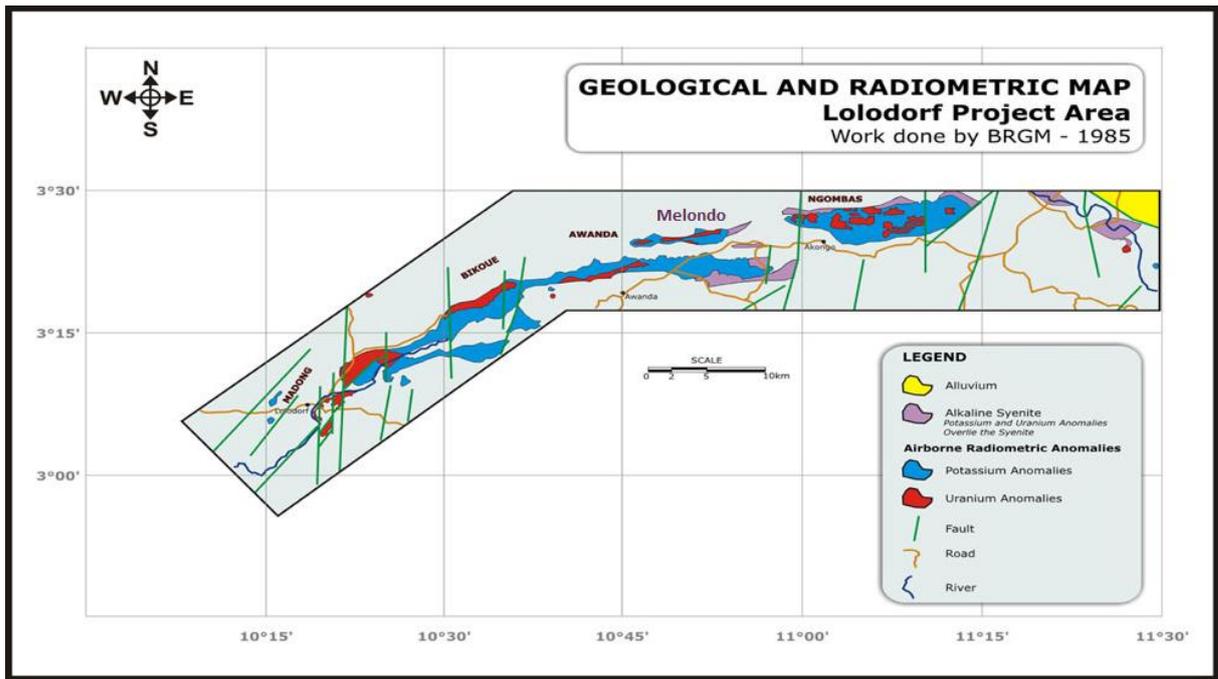


Figure13 : Carte géologique et radiologique de la région de Lolodorf

1.4.3. Radioactivité naturelle dans la localité de Lolodorf

Des précédentes études menées par spectrométrie gamma ont permis d’avoir des ordres de grandeurs de la concentration des radioéléments tels que : ^{40}K , ^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th et ^{226}Ra dans les roches et les sols. Les Tableaux 5 et 6 présentent les valeurs moyennes des concentrations obtenues.

Tableau 3 : Données de la littérature sur la concentration des radioéléments dans les sols de la localité de Lolodorf

Concentration d’activité moyenne dans les sols (Bq/kg)					Référence
^{40}K	^{238}U	^{235}U	^{232}Th	^{226}Ra	
1482	450	21	177	134	<i>Beyala et al., 2010, 2011 ;</i>
1050	n.a.	n.a.	480	160	<i>Ele et al., 2010.</i>

Le débit de dose absorbée moyen qui en résulte varie entre 233nGy/h (*Beyala et al., 2010*) et 1427nGy/h (*Ele et al., 2010*). Ce qui correspond à une dose efficace annuelle extérieure (outdoor) comprise entre 0,257 et 1,75mSv.

Tableau 4 : Données de la littérature sur la concentration des radioéléments dans les roches de la localité de Lolodorf

Concentrations d'activité moyenne dans les roches (Bq/kg)					Référence
⁴⁰ K	²³⁸ U	²³⁵ U	²³² Th	²²⁶ Ra	
2001	1383	63	414	329	<i>Beyala et al., 2010 ; Beyala et al., 2011.</i>
1520	n.a.	n.a.	1040	1580	<i>Ele et al., 2010.</i>

Une autre étude menée par Ele-Abiama (*Ele et al., 2012*) avait permis de mesurer la concentration des radioéléments dans les cultures vivrières telles que : le manioc, l'arachide, l'igname et le plantain. Les résultats sont consignés dans le Tableau 7.

Tableau 5 : Concentrations du ⁴⁰K, du ²²⁶Ra et du ²²⁸Ra dans certaines cultures vivrières.

Plante comestible	Concentrations d'activité (Bq/kg poids humide)		
	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra
Tubercule de manioc	8,3	1,3	0,8
Igname	157	0,7	0,4
Plantain	107	0,04	0,2
Arachide	195	6	n.a

A partir de ces études, une estimation du facteur de transfert sol-plante avait été faite pour certains groupes de plantes (*Ben-Bolie et al., 2013*). Le Tableau 8 présente quelques résultats.

Tableau 6 : Facteurs de transfert sol-plante de l'²³⁸U et du ²³²Th pour certains végétaux.

Groupe de plante	Compartiment étudié	Facteur de transfert (kg/kg)	
		²³⁸ U	²³² Th
Légumes	Graines	0,52	0,05
Fruits	Plantain	0,02	0,08
Tubercules	Manioc	1,22	0,41
	Igname	0,55	0,2
Feuille	Feuille de manioc	0,73	0,97

Dans ce chapitre consacré à la revue de la littérature, nous avons fait un tour d'horizon sur la radioactivité naturelle α , les radioéléments naturels émetteurs α , la spectrométrie α et la situation géographique et radiologique de la localité de Lolodorf. Il ressort de ce chapitre que :

- La radioactivité naturelle émane des trois familles radioactives naturelles que sont : la famille du ^{235}U , la famille de ^{238}U et la famille du ^{232}Th ;
- Les principaux radioisotopes émetteurs α de ces familles sont : ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th , ^{226}Ra et ^{210}Po ;
- La localité de Lolodorf est une zone uranifère et par conséquent présente une radioactivité naturelle élevée à certains endroits.

Il est question dans le chapitre qui suit, de présenter la méthode utilisée ainsi que le matériel associé pour l'analyse par spectrométrie α des sols et plantes prélevés à Ngombas et Melondo, deux villages de l'arrondissement de Lolodorf et ses environs.

CHAPITRE 2 : MATERIELS ET METHODES

CHAPITRE 2 : MATERIELS ET METHODES

Les échantillons de sols et de fougère ont été prélevés dans les villages de Melondo et Ngombas de la localité de Lolodorf et ses environs. Leur conditionnement a été fait au Laboratoire de Physique Nucléaire du Département de Physique de la Faculté des Sciences de l'Université de Yaoundé I. L'analyse de ces échantillons par spectrométrie nucléaire s'est faite à l'Institut des Sciences et Techniques Nucléaires (ISTN) de Lisbonne au Portugal dans le Laboratoire de Surveillance Radiologique de l'Environnement. Nous avons pour cela utilisé la technique d'extraction séquentielle pour la séparation chromatographique des différents radioisotopes de l'uranium et du thorium.

Il est question dans ce chapitre de présenter toutes les étapes du processus ainsi que le matériel utilisé pendant les manipulations allant de la collecte des échantillons jusqu'au comptage α .

2.1. Collecte des échantillons

Dix (10) échantillons de solss et de fougère ont été collectés dont cinq à Ngombas et cinq à Melondo.

2.1.1. Prélèvement des échantillons de sols

Le sol a été prélevé en surface à une profondeur de 10cm à l'aide d'une tarière. Les échantillons prélevés ont été préalablement séchés au soleil, puisintroduits dans des boîtes en plastique. Ces échantillons étaient étiquetés de la manière suivante : SM1 ; SM2, ...SM5 pour les échantillons prélevés à Molondo et SNG1, SNG2, ... SNG5 pour ceux prélevés à Ngombas.

2.1.2. Prélèvement des échantillons de fougère

2.1.2.1. Propriétés de la fougère

Les **fougères** ou **Filicophytes**(*Filicophyta*) forment une sous division de cryptogamesvasculaires. Elles constituent le plus grand embranchement végétal après les angiospermes. On les rencontre principalement dans les régions tropicales. Il existe plusieurs variétés de fougères et la plus répandue dans les localités de Melondo et

Ngombas est la fougère médicinale encore appelée fougère mâle dont l'aspect et la structure sont présentés à la Figure14. C'est une plante médicinale avec des vertus ténifuges et antiparasitaires.

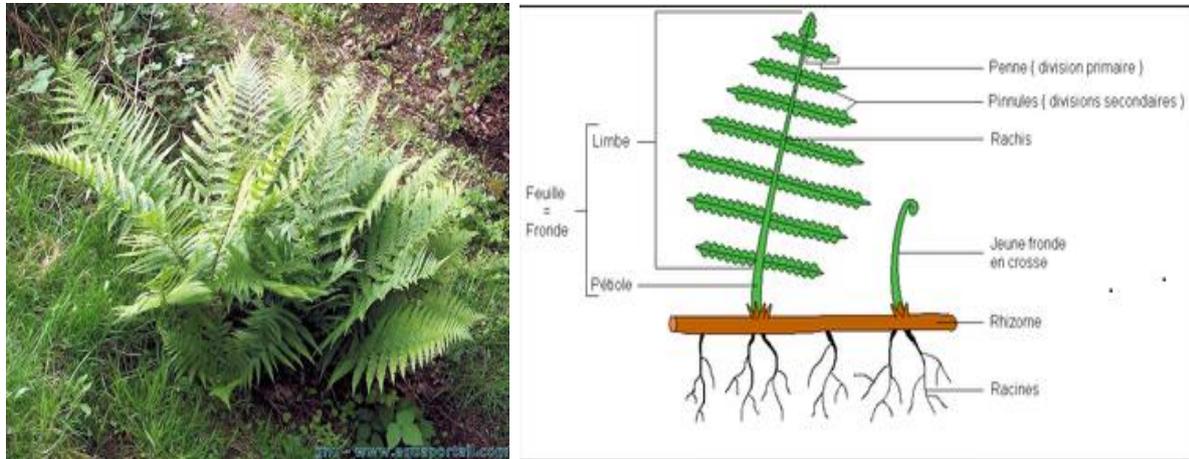


Figure14 : Fougère médicinale

2.1.2.2. Prélèvement

Les échantillons de fougère et de sols ont été prélevés aux mêmes points. Les fougères ont été coupées de façon à collecter la tige et les feuilles, lavés à l'eau potable pour être dépouillés des poussières, emballés séparément dans les plastiques et étiquetés de la manière suivante : FM1, FM2, ... FM5 pour les échantillons prélevés à Melondo et FNG1, FNG2, ... FFNG5 pour ceux prélevés à Ngombas.

2.2. Préparation des échantillons pour analyse

2.2.1. Préparation des échantillons de végétaux

2.2.1.1. Matériel utilisé

Le matériel utilisé pour la préparation des échantillons de végétaux est composé de :

- Les récipients en aluminium (Fig. 15);
- Le congélateur ;
- Le lyophilisateur (Fig.16),
- Le broyeur (Fig.15);
- L'incinérateur (Fig.17) ;

- Les flacons en plastique transparent (Fig.18);
- La balance de précision (Fig.18) ;
- Les tasses en porcelaine.



Figure15 : Récipient en aluminium, balance et broyeur (à gauche le broyeur et à droite le récipient en aluminium posé sur la balance).



Figure16 : Le lyophilisateur



Figure17 : *L'incinérateur*



Figure18 : *Flacons en plastique transparent pour la conservation des échantillons préparés*

2.2.1.2. Procédé

La préparation des échantillons de végétaux se fait en quatre étapes : la congélation, la lyophilisation, le broyage et l'incinération.

a) La congélation

La congélation permet de préparer le séchage humide (lyophilisation). Les

échantillons lavés, pesés, emballés dans du plastique et étiquetés sont introduits dans le congélateur pendant une semaine. Ils seront congelés jusqu'à près de -80°C .

b) La lyophilisation

La lyophilisation consiste à retirer l'eau d'un produit liquide, pâteux ou solide, à l'aide de la surgélation, puis une évaporation sous vide de la glace sans la faire fondre. Le principe de base est que lorsqu'on réchauffe de l'eau à l'état solide à très basse pression, l'eau se sublime, c'est-à-dire qu'elle passe directement de l'état solide à l'état gazeux. La vapeur d'eau (ou de tout autre solvant) quitte le produit et on la capture par congélation à l'aide d'un condenseur, ou piège froid. Cette technique permet de conserver à la fois le volume, l'aspect et les propriétés du produit traité. Elle se fait plus rapidement dans un lyophilisateur. Pour cela, Les échantillons congelés sont introduits dans le lyophilisateur connecté à une pompe à vide. La lyophilisation se passe pendant une semaine à une température de -40°C . A la fin de la lyophilisation, nous obtenons des végétaux bien secs, mais gardant totalement leur verdure initiale. On mesure alors le poids sec pour comparer avec le poids humide.

Le Tableau 7 présente les masses des différents échantillons de fougères prélevés.

Tableau 7 : Masses des échantillons de fougère prélevés

Lieu de prélèvement	Code échantillon	Poids humide Ph (en g)	Poids sec Ps (en g)	Taux (Ps/Ph)
Melondo	FM1	38	31,1	0,82
	FM2	12,7	11,9	0,94
	FM3	27	25,6	0,95
	FM4	29	26	0,90
	FM5	43	36	0,84
Ngombas	FG1	18,6	15	0,81
	FG2	31,2	22,7	0,73
	FG3	23	15,8	0,69
	FG4	33,3	26	0,78
	FG5	28	19,2	0,69

Le rapport masse sèche sur masse humide n'est pas suffisamment faible, ce qui

s'explique par le fait que les échantillons de végétaux ont perdu une partie d'eau pendant le conditionnement des échantillons après prélèvement.

c) Broyage des échantillons

Les échantillons lyophilisés sont introduits dans un broyeur pour les rendre en poudre. Après chaque broyage, on prend la précaution de laver le broyeur avant de procéder au broyage de l'échantillon suivant. Les poudres obtenues sont conservées dans des flacons en plastique transparents et étiquetés.

d) Incinération de poudres sèches

Pour l'analyse des autres radioéléments différents du ^{210}Po , on a besoin d'incinérer les échantillons en poudre sèche. Pour cela, on transfère le reste des échantillons secs après avoir prélevé les quantités nécessaires pour l'extraction du polonium dans les tasses en porcelaine. Ces tasses sont ensuite introduites dans l'incinérateur initialement réglé à la température de 100°C . Par la suite, on augmente progressivement la température de 50°C , environ toutes les six heures jusqu'à atteindre 450°C . Cette opération dure presque 3 jours.

2.2.2. Préparation des échantillons de sols

2.2.2.1. Matériel utilisé

Les autres matériels utilisés pour la préparation des échantillons de sols en dehors des récipients en aluminium et des flacons en plastique sont :

- les pilons en porcelaine (Fig.19) ;
- le four (Fig.20) ;
- le tamiseur électrique et les accessoires de granulométrie (Fig. 21).



Figure19 : Pilon en porcelaine



Figure20 : Four contenant six échantillons.



Figure21 : *Tamiseur électrique*

2.2.2.2. Mode opératoire

a) Séchage des échantillons

Les échantillons de sols sont transférés dans des récipients en aluminium étiquetés de la même manière que les échantillons de départ puis introduits dans le four dont la température est réglée entre 80 et 100°C. Le séchage dure entre un et deux jours.

b) Tamisage

Le tamisage permet de séparer le sol des sables et d'autres matériaux solides. Pour cela, une fois refroidis, les échantillons de sols sont remués à l'aide de petits pilons en porcelaine pour l'homogénéisation. Ils sont ensuite transférés dans le tamis de granulométrie 125µm et tamisés. On recueille ainsi les sols en poudre qu'on conserve dans les flacons étiquetés en attendant l'analyse chimique.

2.3. Traitement chimique pour extraction des radioéléments

La technique utilisée dans le cadre de ce travail est l'extraction séquentielle développée par le Laboratoire de Radioactivité Environnementale de l'Institut des

Sciences et Techniques Nucléaires de Lisbonne (*Olivera et al., 2006*). Cette méthode vient optimiser les techniques existantes de chromatographie sur colonne, par l'utilisation des colonnes préparées d'avance et prêtes pour l'emploi. Dans cette technique, le polonium est directement déposé sur un disque en argent pur (99,9%), tandis que l'uranium, le thorium et le radium subissent une électrodéposition.

2.3.1. Matériel utilisé

Le matériel utilisé pour l'extraction des radioéléments par traitement chimique comprend :

- Une balance de précision (Fig.22) ;
- Les béchers ;
- Les millipipettes (Fig.23) ;
- Les tubes téflon (Fig.24) ;
- Les plaques chauffantes (Fig.25) ;
- Le four à micro-ondes (Fig.26) ;
- L'acide nitrique concentré ;
- L'acide chlorhydrique concentré ;
- L'acide fluorique ;
- L'octanol ;
- L'eau oxygénée ;
- L'eau distillée ;
- La solution de ^{209}Po ;
- La solution d'un mélange de ^{232}U , ^{229}Th et ^{224}Ra ;
- La plaque magnétique (Fig. 27)
- Les résines UTEVA, AG50W×12 et AG1×8 ;
- Les colonnes de chromatographie (Fig. 28).



Figure22 : Balance électrique de haute précision



Figure23 : *Micropipette*



Figure24 : *Tubes téflon*



Figure25 : *Béchers et Plaque chauffante recouverte de papier aluminium*



Figure26 : Four à micro-ondes



Figure27 : Plaque magnétique pour la déposition du polonium

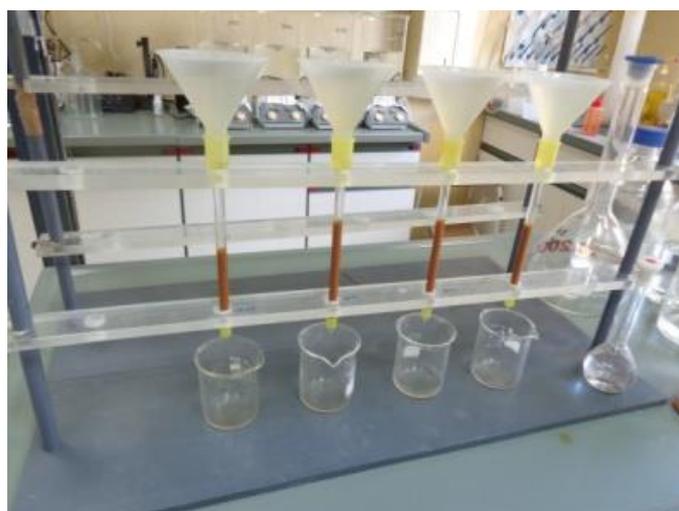


Figure28 : Colonnes de résine pour chromatographie

2.3.2. Mode opératoire

2.3.2.1. Extraction et déposition du polonium

Pour les échantillons de végétaux, l'analyse du polonium s'est faite séparément tandis que pour les échantillons de sols, on utilise le même échantillon pour analyser tous les radioéléments. Sauf que, le polonium subit directement une déposition après traitement chimique.

a) Précipitation des matières inorganiques

A l'aide d'une balance de haute précision, on prélève une masse de 1g de poudre d'échantillon de végétaux et 300mg de sols obtenus après préparation. Les échantillons de végétaux sont introduits dans les béchers tandis que les échantillons de sols sont introduits dans les tubes téflon .A l'aide d'une millipipette, on y ajoute successivement :

- 0,5ml d'une solution de ^{209}Po , 100 μl d'une solution constituée d'un mélange de (^{232}U - ^{228}Th - ^{224}Ra) et 1ml de ^{229}Th comme traceurs ;
- 0,2ml d'octanol ;
- 100ml d'acide nitrique 65% et 50ml d'acide chlorhydrique 37% (aqua regia) ;
- 3ml d'acide fluorique (HF) dans les échantillons de sols pour la dissolution de la silice.

Après une nuit de repos, le mélange ainsi obtenu est évaporé à 200°C sur une plaque chauffante jusqu'à l'obtention d'un résidu.

b) Digestion complète des matières organiques

Pour les échantillons de végétaux, on ajoute au mélange précédant de l'acide nitrique concentré et quelques gouttes de peroxyde d'hydrogène (H_2O_2) puis, on chauffe sur une plaque jusqu'à obtention d'un résidu blanc par évaporation des matières organiques. Pour les échantillons de sols, cette digestion se fait dans un four à micro-ondes pendant 15 minutes.

c) Lavage de l'acide nitrique

On dissout le résidu blanc obtenu avec de l'acide chlorhydrique et on fait évaporer le mélange à une température voisine de 200°C en y ajoutant quelques

gouttes de peroxyde d'hydrogène.

d) Déposition du polonium

On dissout le résidu des béchers obtenu après lavage de l'acide nitrique avec de l'acide chlorhydrique concentré et on ajoute 50ml d'eau distillée. Le mélange ainsi obtenu est transféré dans un flacon préalablement préparé et contenant un barreau aimanté et 10ml d'acide ascorbique. On retourne ainsi le flacon que l'on place sur une plaque magnétique pendant un jour.

2.3.2.2. Séparation chromatographique et électrodéposition de l'uranium, du thorium et du radium.

Après la déposition du polonium, le reste des échantillons de sols est traité pour éliminer l'acide fluorique (HF), de peur d'attaquer les disques en acier inoxydable utilisés pour l'électrodéposition. Pour cela, on fait évaporer le reste de la solution qu'on traite ensuite par l'acide chlorhydrique. Pour la séparation chromatographique, il existe deux techniques. Dans le cadre de ce travail, nous avons utilisé les deux méthodes et les résultats étaient similaires.

a) Séparation chromatographique par la technique 1

Cette technique utilise trois types de colonnes pré-conditionnées à partir des résines UTEVA, AG50W×12 et AG1×8 et se déroule en six (06) étapes schématisées à la Figure 37.

i) Préparation des colonnes chromatographiques

La première colonne est faite à partir de la résine UTEVA pré-conditionnée avec HNO_3 -3M, la deuxième colonne permettant l'échange des cations est faite à partir de la résine AG50W×12 équilibrée avec HCl -5M, et la troisième colonne est préparée avec une résine cationique AG1×8 équilibrée avec HCl -2M.

ii) Préparation de la solution pour séparation chromatographique

La solution restante après déposition du polonium est évaporée jusqu'à l'obtention d'un résidu. Ce résidu est dissout avec 10 ou 15ml d'une solution HNO_3 -3M et de $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ -1M. Ensuite on ajoute 2 ml ou 3 ml de sulfate ferreux. Après agitation, on ajoute 200 mg d'acide ascorbique dans le mélange pour obtenir la solution prête pour la séparation des radionucléides.

iii) Séparation du mélange (Ra,Pb)

La solution de l'étape précédente est introduite dans la première colonne (UTEVA) ; on recueille 20ml de fraction d'éluât qui contient non seulement Ra et Pb mais aussi d'autres éléments tels que Fe, Mn, Pu et Am. On conserve cette quantité pour une nouvelle séparation. On prend soin de relever la date et l'heure de cette opération pour corriger la décroissance du Ra dans le calcul de l'activité.

iv) Extraction de Th

On poursuit l'élution de la colonne 1 avec 5ml de HCl-9M et 20ml d'un mélange de HCl-5M et acide oxalique-0,05M. L'éluât obtenue contient du thorium suffisamment pur et, dans certains cas, du neptunium. Cette solution subira une électrodéposition pour le dépôt du thorium.

v) Extraction de U

On continue l'élution de la première colonne avec 15 ml de HCl-0,01M. L'éluât obtenu contient de l'uranium prêt pour l'électrodéposition.

vi) Séparation de Ra et Pb

On prend la première solution d'éluât mise de côté au départ, qu'on fait vaporiser lentement jusqu'à sécher. Le résidu obtenu est traité avec une petite quantité de HCl pour convertir les sels en chlorures jusqu'à obtention d'un nouveau résidu. Ce nouveau résidu est dissout avec 6ml de HCl concentrée et on introduit cette nouvelle solution dans la deuxième colonne (AG50W×12). La première fraction d'éluât, après lavage avec HCl-5M, contient du plomb qui ne nous intéresse pas dans le cadre de cette étude.

On poursuit l'élution de cette même colonne avec HCl-5M jusqu'à obtention de 40-90ml d'éluât contenant du radium prêt pour l'électrodéposition.

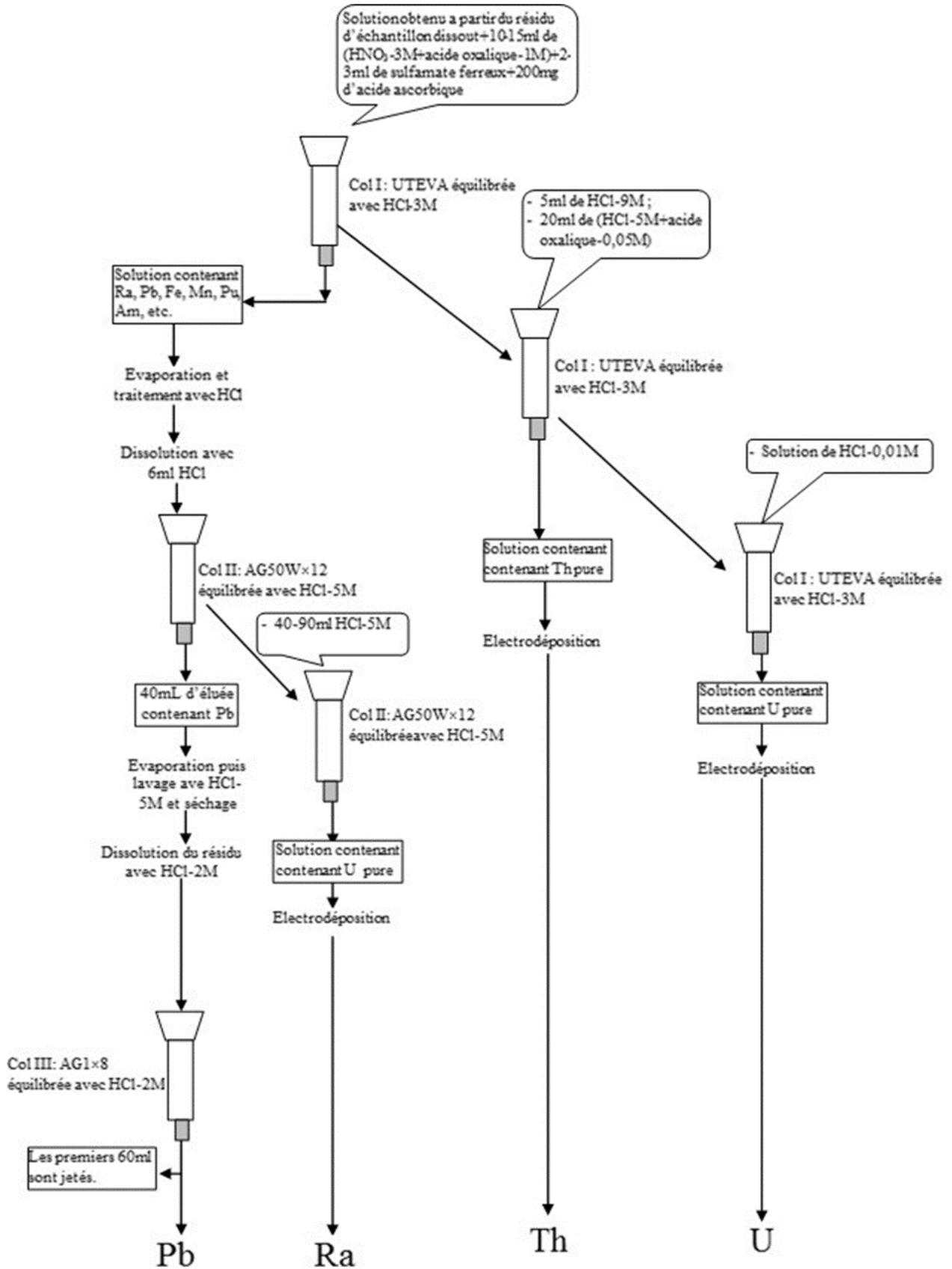


Figure 29 : digramme de la séparation chromatographie par la technique 1

b) Séparation chromatographique par la technique 2

La technique 2 utilise uniquement les résines AG50W×12 pré-conditionnées dans les colonnes. Elle consiste en six étapes :

i) Elimination de l'acide fluorique (HF) dans la solution

Le reste de la solution après déposition du polonium est transféré dans les béchers étiquetés; après évaporation, le résidu obtenu est traité avec HCl pour éliminer totalement l'acide fluorique, qui pourrait attaquer les disques en acier inoxydable pendant l'électrodéposition.

ii) Préparation de la colonne AG50W×12

On prélève à l'aide d'une cuillère la résine AG50W×12 que l'on introduit dans un bécher contenant HCl-5M ; à l'aide d'une pipette, on prélève cette solution de résine qu'on introduit dans les éprouvettes, jusqu'à obtenir le niveau de résine correspond à 4ml. Après remuage, on transfère la solution dans les colonnes à chromatographie. On ajoute 40ml de HCl-5M et on laisse couler. A la fin, la résine est prête pour l'élution de la solution des radioéléments.

iii) Extraction de U et Ra

On dissout le résidu d'échantillon avec 6ml de HCl-5M. Après agitation, on transfère la solution dans les colonnes. On laisse couler les 6 premiers ml, puis on lave les béchers avec 4ml de HCl-5M, on transfère le mélange dans la colonne et on laisse couler, ce qui fait au total 10ml de HCl-5M déjà ajoutés. On va ajouter les 30 autres ml de la manière suivante : 10ml et 20ml ; On recueille ainsi 40ml d'éluant contenant U et Pb qu'on va faire évaporer sur une plaque chauffante.

iv) Extraction de Ra

On continue l'élution des colonnes précédentes en ajoutant 80ml de HCl-5M en notant l'heure et la date de début. On mesure le volume d'éluant après une heure pour estimer la vitesse d'élution (ici 11ml/h), ceci pour estimer le temps nécessaire pour l'élution des 80ml (soit environ 08H). L'éluât contient du Ra prêt pour l'électrodéposition.

v) Extraction de Th

On poursuit l'élution de la colonne après extraction de Ra, en ajoutant 40ml de

HCl-5M. Il faudra attendre plusieurs heures pour l'élution totale. On obtient ainsi une solution de Th prête pour l'électrodéposition.

vi) Extraction de U

Le mélange (U, Pb) évaporé est dissout avec 10ml d'une solution de HNO₃-3M et Al(NO₃)₃-1M. On ajoute 2ml de sulfamate ferreux pour réduire le Pu qui peut être présent dans l'échantillon (la solution de sulfamate ferreux se prépare à partir de l'acide sulfamique et de la limaille de fer : 1.8g de Fe et 14,25g d'acide sulfamique pour 50ml). On continue le traitement de la manière suivante :

- On ajoute 200mg d'acide ascorbique solide mesurés avec une balance ;
- On transfère le mélange dans les tubes à centrifugation pour faire la centrifugation pendant 5min ;
- Après centrifugation, on introduit le mélange dans les colonnes UTEVA contenant 2ml de résine préparées avec 5ml de HNO₃-3M (ces colonnes sont vendues avec la résine, on ouvre et on ajoute 5ml de HNO₃-3M au préalable);
- On rince les béchers avec HNO₃-3M et on procède à la centrifugation du mélange et on ajoute aux colonnes ;
- On ajoute 5ml de HNO₃-3M et on laisse éluer ;
- On ajoute 5ml de HCl-9M pour changer la résine en chlorhydrique ;
- On ajoute un mélange de 20ml de HCl-5M+acide oxalique-0,05M ;
- A ce niveau, on a ainsi évacué le Pb et d'autres métaux comme le fer ;
- Pour l'élution de l'uranium, on introduit 15ml de HCl-0,01M dans les colonnes et on attend l'élution totale.

L'éluate obtenue dans cette étape contient de l'uranium prêt pour l'électrodéposition.

Le résumé de cette deuxième technique est présenté à la Figure 30.

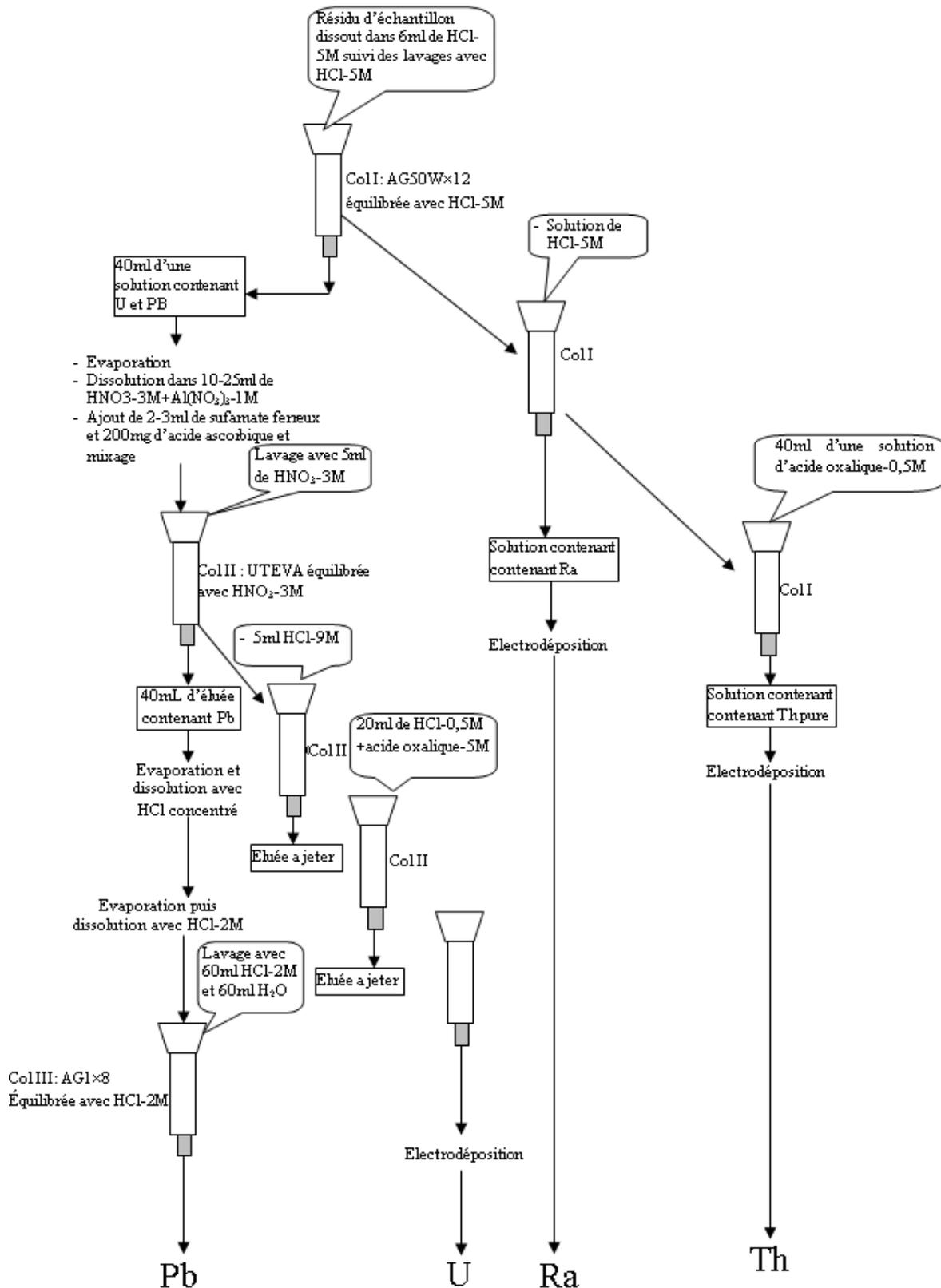


Figure30 : représentation schématique de la séparation chromatographique technique 2

2.4. Electrodeposition de l'uranium, du thorium et du radium

L'électrodeposition est une technique d'électrolyse utilisée pour appliquer au moyen d'un courant électrique continu, un dépôt métallique à la surface d'un objet, le métal étant initialement sous forme de cations en solution dans un solvant(en général de l'eau).

2.4.1. Matériel utilisé

Le matériel utilisé pour l'électrodeposition comprend :

- Le dispositif d'électrolyse (Fig.31) ;
- Le chlorure de magnésium ;
- L'acide oxalique ;
- L'acide fluorique ;
- Le pH-mètre.



Figure31 : *Dispositif d'électrolyse pour électrodeposition*

2.4.2. Electrodeposition de l'uranium

L'électrodeposition de l'uranium se fait suivant le procédé ci-après :

- La fraction d'élution contenant de l'uranium pour électrodeposition, est évaporée à sec et le résidu est traité avec quelques gouttes de HNO_3 pour convertir les sels ;
- Le résidu sec est dissous avec 10ml d'une solution d'ammonium (100g/L de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$) ; on ajuste le pH à 2 avec le H_2SO_4 et on transfère dans la cuve à électrolyse ;
- L'électrodeposition est effectuée pendant 1 heure avec une intensité du courant électrique de 1A ;
- Après électrolyse, la surface du disque est rincée avec de l'eau distillée et de

l'éthanol et chauffée sur la plaque chauffante.

2.4.3. Electrodeposition du thorium

On chauffe l'éluât contenant le thorium jusqu'à 400°C pour faire évaporer l'acide oxalique après avoir ajouté quelques gouttes de Na_2SO_4 (3 ou 4ml) afin de retenir le thorium sous forme de sulfate. Les paramètres électriques d'électrodeposition du thorium sont identiques à ceux de l'électrodeposition de l'uranium.

2.4.4. Electrodeposition du radium

L'électrodeposition du radium passe par les étapes suivantes :

- La portion d'éluât contenant le radium est évaporée de façon à éliminer le HCl ;
- On apprête le dispositif d'électrodeposition et on nettoie les disques en acier inoxydable avec de l'éthanol (les disques constituent la cathode, l'anode est en platine);
- On monte le dispositif, la distance entre l'anode en platine et la cathode constituée du disque en acier inoxydables est de l'ordre de 2mm;
- Le résidu obtenu après évaporation est dissout avec 6ml d'acétate d'ammonium-0,35M ; on rince bien le bécher et on transfère dans les tubes à électrolyse étiquetés conformément à l'échantillon ;
- On rince à nouveau le bécher avec 6 autres ml qu'on ajoute dans la cuve à électrolyse ;
- On fait les connexions et on met le générateur de courant continu en marche, l'intensité du courant débité est environ 2,8A ; les cuves étant montées en parallèle, chacune est traversée par 0,7A environ ; le pH de l'électrolyte est de 5,5 ; le temps d'électrodeposition est d'environ 3H ;
- Pour arrêter l'électrodeposition, on ajoute de l'ammoniac dans les cuves puis, on arrête le générateur et on démonte le dispositif ;
- On retire les disques et on les lave avec l'éthanol puis ; on les sèche pour les transférer ensuite au spectromètre pour comptage.

2.5. Analyse spectrométrique α

Une fois l'extraction chimique faite, la déposition et l'électrodeposition

terminées, les disques obtenus sont utilisés pour l'analyse par spectrométrie nucléaire alpha.

2.5.1. Matériel utilisé

Nous avons utilisé une chaîne de spectrométrie α équipée de dix-huit (18) détecteurs à implant d'ions au silicium. Cette chaîne est couplée à un système informatique où était installé le logiciel MAESTRO pour l'analyse du spectre (Fig.32, 33).



Figure32 : Poste de spectrométrie α . A droite on a six chambres à vides où sont logés les détecteurs, à gauche, on a l'électronique de production et de traitement du signal issu des détecteurs.

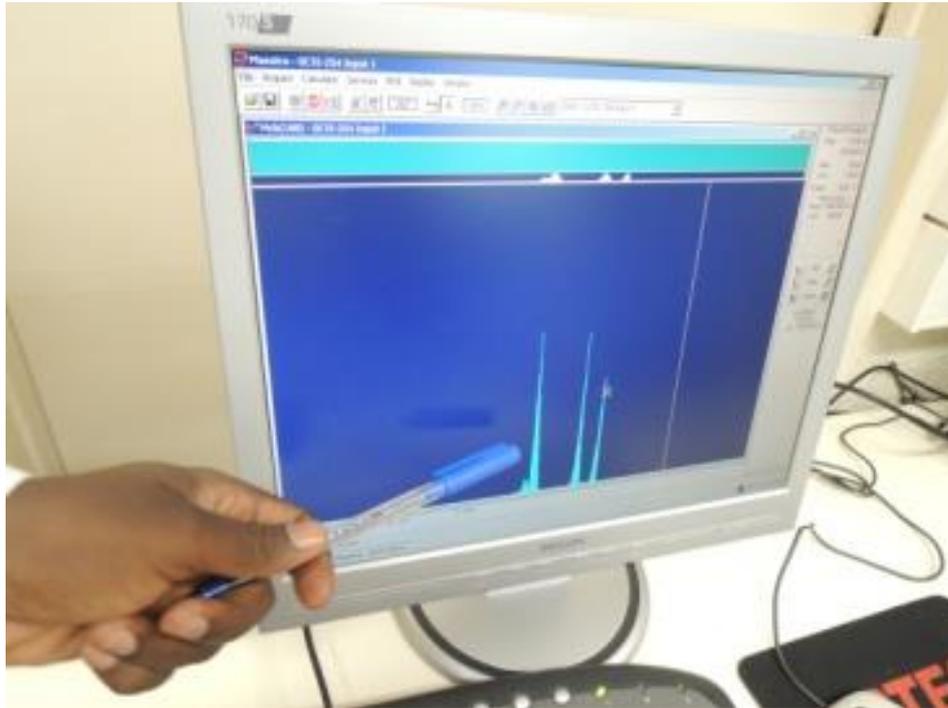


Figure33 : Système informatique équipé du logiciel MAESTRO. On observe les pics alpha des radioisotopes mis en jeu.

2.5.2. Comptage α

Une fois les disques face aux détecteurs, le comptage se faisait sur une durée de six heures environ. Ce comptage était précédé de certaines opérations préalables pour l'analyse spectrométrique.

a) La détermination de l'efficacité des détecteurs

Pour déterminer l'efficacité des détecteurs, on utilise une source standard multi α (Fig.34) constituée d'un mélange de neptunium (Np-237 ; $T_{1/2}=2,14 \times 10^6$ ans), d'américium (Am-241 ; $T_{1/2}=433,176$ ans) et de curium (Cm-244 ; $T_{1/2}=18,1$ ans) dont les caractéristiques initiales (activités/dates) sont présentées dans le Tableau8. Les activités aux dates de mesures étaient calculées à partir de la loi de décroissance radioactive.

Tableau 8 : Caractéristiques de la source standard utilisée pour la détermination de l'efficacité des détecteurs

Radioélément	Période	Energie α max (keV)	Activité initiale	Date de mesure
Neptunium (Np-237)	$2,14 \times 10^6$ ans	4788,10	150Bq	20-09-2000
Américium (Am-241)	433,176 ans	5485,70	100Bq	20-09-2000
Curium (Cm-244)	18,1 ans	5805,00	100Bq	20-09-2000

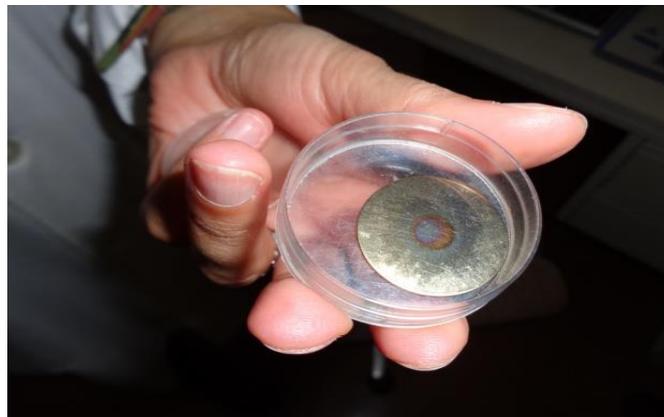


Figure34 : Source standard multi α

Une fois le spectre obtenu, on relève pour chaque pic le comptage net et l'efficacité était calculée par la formule suivante :

$$E = \frac{N}{T \times A(t)}, \quad (2-1)$$

N est le comptage total (surface du pic); T est le temps de comptage en seconde et $A(t)$ est l'activité du radioélément à la date de mesure.

b) Mesure de l'activité à blanc

Cette mesure se fait en composant une solution sans échantillon mais en utilisant les traceurs pour chaque radioélément. On procède à la même analyse radiochimique comme s'il y avait l'échantillon. Le spectre du blanc nous permettait de calculer le bruit de fond pour chaque radioélément.

c) Détermination du comptage net

Le comptage net est la différence entre le comptage brut (surface du pic) et le bruit de fond obtenu avec la solution du blanc. Pour chaque radioélément, ce comptage est donné par la formule suivant :

$$N = N_T - \frac{T}{T_0} N_0, \quad (2-2)$$

où

- N est le comptage net ;
- N_T est le comptage brut ;
- N_0 est le comptage du bruit de fond ;
- T est le temps de comptage de l'échantillon et T_0 est le temps de comptage du bruit de fond.

L'incertitude sur N est obtenue par la relation suivante :

$$\Delta N = \sqrt{N_T + \frac{T}{T_0} N_0}. \quad (2-3)$$

d) Rendement chimique

Le rendement chimique est obtenu à partir du spectre du traceur utilisé pour chaque radioélément. Le Tableau9 donne les traceurs utilisés à raison d'un traceur pour chaque radionucléide. Les activités des différents traceurs sont connues.

Tableau 9 : traceurs utilisés pour les différents radionucléides

Radioélément	Traceur	Activité (Bq)
Uranium	^{232}U	0,077±0,001
Thorium	^{229}Th	0,213±0,002
Radium	^{224}Ra	0,160±0,002
Polonium	^{209}Po	0,198±0,06

Le rendement chimique est donné par :

$$\mu = \frac{N_{tr}}{T \times E \times A_{tr}}, \quad (2-4)$$

où

- N_{tr} est le comptage net du pic du traceur ;
- T est le temps de comptage ;
- E est l'efficacité du détecteur utilisé ;
- A_{tr} est l'activité initiale du traceur.

2.5.3. Etude des spectres

2.5.3.1. Spectre du polonium

Le spectre du polonium présente deux pics : le pic de ^{210}Po (5 304,5keV) et le pic de ^{209}Po (6300keV) utilisé comme traceur. La Figure35 montre l'allure du spectre du polonium. L'activité du ^{210}Po dans l'échantillon sec est donnée par :

$$A = \frac{N(^{210}\text{Po})}{T \times E \times \mu \times e^{-\lambda t}} - A_0 ; \quad (2-5)$$

- $N(^{210}\text{Po})$ est le comptage net du pic de ^{210}Po ;
- T est le temps de comptage ;
- E est l'efficacité du détecteur utilisé ;
- m est la masse de l'échantillon sec prélevé ;
- t est la durée qui sépare le début de traitement chimique et le début du comptage ;
- μ est le rendement chimique ;
- A_0 est l'activité du blanc.

L'incertitude sur l'activité de l'échantillon est donnée par :

$$\Delta A = \sqrt{\left(\frac{\Delta N}{N}\right)^2 + \left(\frac{\Delta T}{T}\right)^2 + \left(\frac{\Delta E}{E}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \mu}{\mu}\right)^2 + (\Delta A_0)^2}. \quad (2-6)$$

Connaissant la masse de l'échantillon traité, on en déduit la concentration d'activité dans celui-ci, soit :

$$As = \frac{A}{m} \quad (2-7)$$

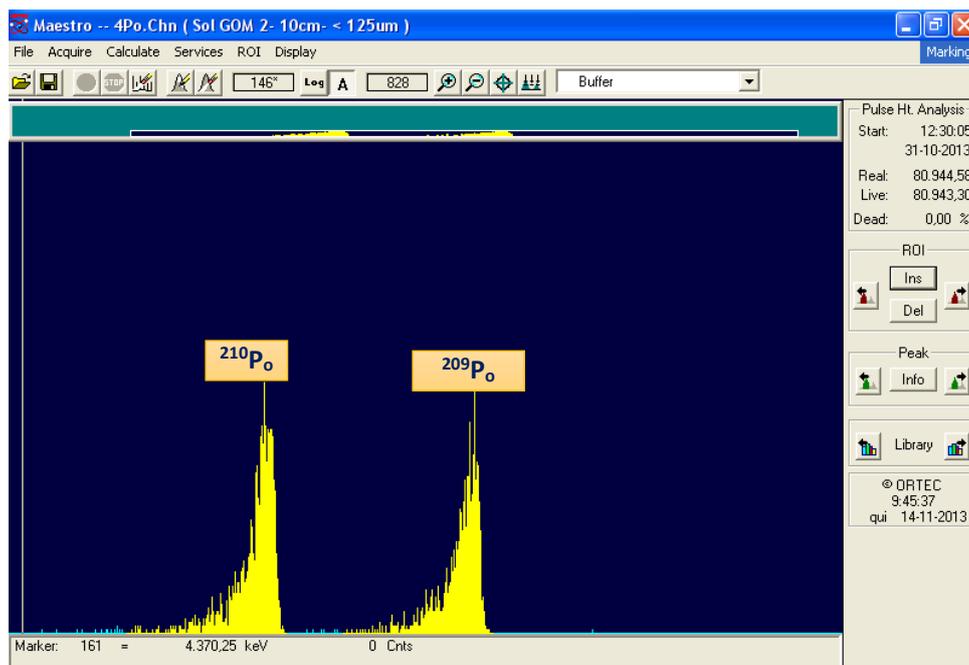


Figure35 : Spectre du polonium

a) Spectre de l'uranium

Le spectre de l'uranium naturel présente trois pics : les pics de ^{238}U (4198 keV), de ^{235}U (4396keV) et de ^{234}U (4775keV). Le traceur est ^{232}U (4824keV) (Fig.36).

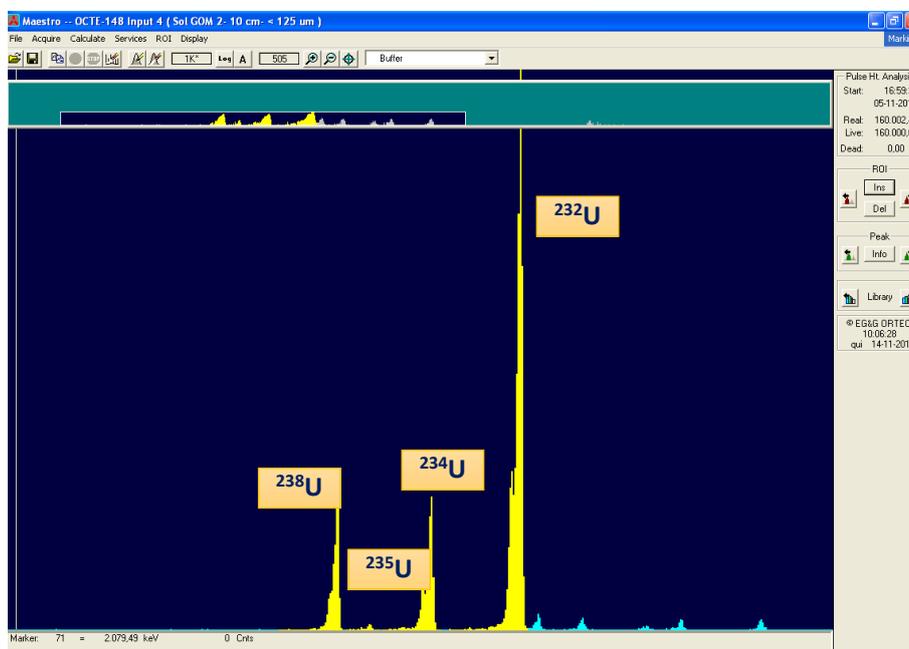


Figure36 : Spectre de l'uranium vu sur ordinateur

Dans le pic de ^{235}U , ^{238}U compte pour 5,7%, ^{234}U pour 10,9%. Ainsi les comptages nets de chaque radioisotope est donné par :

$$\begin{cases} N(^{235}\text{U}) = \left(N_T(^{235}\text{U}) - \frac{T}{T_0} \times N_0(^{235}\text{U}) \right) \times \frac{100}{83,4} \\ N(^{238}\text{U}) = \left(N_T(^{238}\text{U}) - \frac{T}{T_0} \times N_0(^{238}\text{U}) \right) - \frac{5,7}{100} N(^{235}\text{U}) \\ N(^{234}\text{U}) = \left(N_T(^{234}\text{U}) - \frac{T}{T_0} \times N_0(^{234}\text{U}) \right) - \frac{10,9}{100} N(^{235}\text{U}) \end{cases} \quad (2-8)$$

- $N(^A\text{X})$ est le comptage net de ^AX ;
- $N_T(^A\text{X})$ est le comptage total du pic de ^AX ;
- $N_0(^A\text{X})$ est le comptage du bruit de fond de ^AX ;
- T est le temps de comptage de l'échantillon ; et
- T_0 est le temps de comptage du bruit de fond.

Les incertitudes respectives sur les comptages nets sont calculées à partir de la statistique de Poisson :

$$\Delta N(^A_Z\text{X}) = \sqrt{N(^A_Z\text{X})} \quad (2-9)$$

Au regard de la période des isotopes de l'uranium, on néglige la durée de traitement de l'échantillon. L'activité et la concentration d'activité de chaque radioisotope dans l'échantillon sont données par :

$$\begin{cases} A(^A\text{X}) = \frac{N(^A\text{X})}{E \times T \times \mu} - A_0 \\ C(^A\text{X}) = \frac{A(^A\text{X})}{m} \end{cases} ; \quad (2-10)$$

- A_0 est l'activité du blanc ;
- m est la masse de l'échantillon sec prélevé ;
- T est le temps de comptage ;
- E est l'efficacité du détecteur ;
- μ est le rendement chimique.

On peut aussi calculer la concentration massique C_m de chaque radioisotope de l'uranium, soit :

$$Cm(^A\text{X}) = As(^A\text{X}) \times F(^A\text{X}), \quad (2-11)$$

- $As(^A X)$ est l'activité spécifique de $^A X$ exprimé en Bq/kg ;
- $F(^A X)$ est le facteur de conversion de l'activité en masse exprimé en g/Bq ;
- $Cm(^A X)$ est la concentration massique de $^A X$ exprimée en g/kg.

En général, $F(^A X)$ se calcule par :

$$F(^A X) = \frac{T(^A X) \times M(^A X)}{\ln 2 \times N_A}, \quad (2-12)$$

- $M(^A X)$ est la masse atomique de $^A X$,
- $T(^A X)$ sa période ;
- N_A est le nombre d'Avogadro.

Le Tableau 10 donne les facteurs de conversion des différents radioisotopes naturels émetteurs α .

Tableau 10 : facteurs de conversion de l'activité en masse des radioisotopes naturels de l'uranium

Isotope $^A X$	$T(^A X)$ (s)	$F(^A X)$ (g/Bq)
^{238}U	$1,20 \times 10^7$	$8,041 \times 10^{-5}$
^{235}U	$1,42 \times 10^{17}$	$1,251 \times 10^{-5}$
^{234}U	$2,22 \times 10^{16}$	$4,344 \times 10^{-9}$
^{210}Po	$7,88 \times 10^{12}$	$6,013 \times 10^{-15}$
^{232}Th	$4,42 \times 10^{17}$	$2,454 \times 10^{-4}$
^{230}Th	$2,43 \times 10^{12}$	$1,338 \times 10^{-9}$
^{228}Th	$5,99 \times 10^7$	$3,273 \times 10^{-14}$
^{226}Ra	$5,05 \times 10^{10}$	$2,732 \times 10^{-11}$

2.5.3.2. Spectre du Thorium

Le spectre du thorium présente trois pics (Fig.37) : le pic du ^{228}Th (5423keV), du ^{230}Th (4687keV) et du ^{232}Th (4013keV). Il faut noter que le traceur d'uranium (^{232}U) introduit dans la solution au départ, est en équilibre avec le ^{228}Th et le ^{224}Ra . Donc, le ^{228}Th présent ici ne provient pas seulement de l'échantillon mais aussi du traceur. La période du ^{228}Th est de 1,9ans. Il faudra donc tenir compte dans les calculs du temps entre la fin de l'élution et le début du comptage (soit une demi-journée) et du

temps moyen de comptage (100 000s=1jours). Ainsi, pour le calcul des comptages nets de ^{228}Th , on procède de la manière suivante :

- On calcule les comptages de ^{232}Th , ^{230}Th et ^{229}Th par la formule : $N(^A X) = N_T(^A X) - \frac{T}{T_0} \times N_0(^A X)$

- On calcule le comptage de ^{224}Ra par :

$$N(^{224}\text{Ra}) = \left(N_T(^{224}\text{Ra}) - \frac{T}{T_0} \times N_0(^{224}\text{Ra}) \right) \times \frac{100}{95}. \quad (2-13)$$

- On en déduit le calcul du comptage de ^{228}Th par :

$$N(^{228}\text{Th}) = \left(N_T(^{228}\text{Th}) - \frac{T}{T_0} \times N_0(^{228}\text{Th}) \right) - 5\%N(^{224}\text{Ra}). \quad (2-14)$$

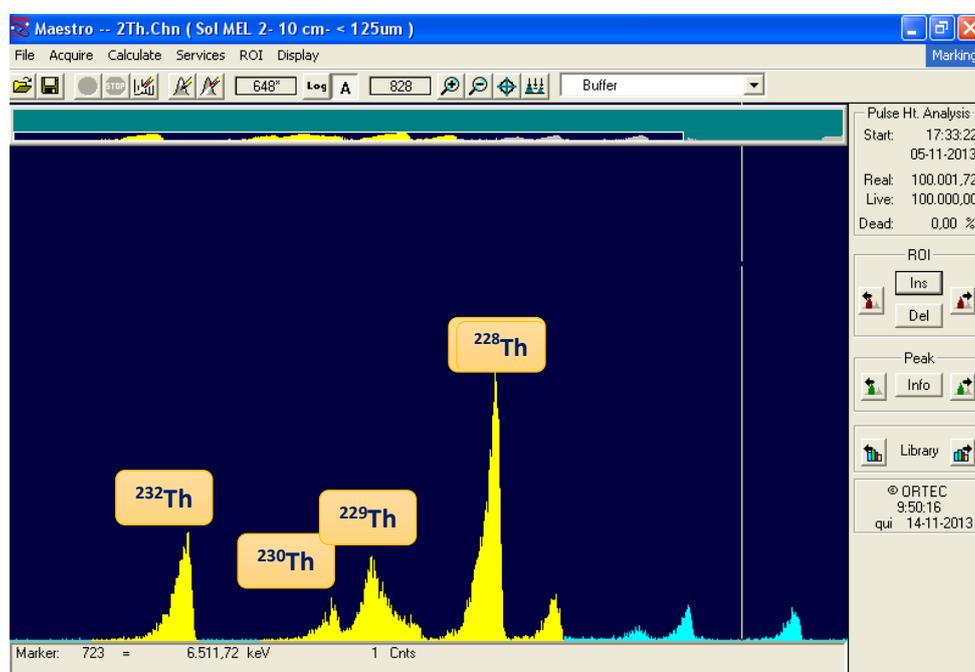


Figure37 : spectre du thorium

t est le temps qui s'écoule depuis la fin de l'éluion et la fin de comptage ($t \approx 1,5j \approx 0,0041an$), T est la période du ^{228}Th ($T=1,9ans$).

2.5.3.3. Spectre du radium

Les radioéléments mis en jeu sont : ^{226}R , ^{224}Ra , ^{222}Rn , ^{225}Ac . La résolution du spectre ne permet pas de séparer ^{224}Ra , ^{222}Rn et ^{225}Ac .

Pour le comptage total du pic de l'ensemble ^{224}Ra , ^{222}Rn et ^{225}Ac , on fait le comptage de l'ensemble des trois et on soustrait le comptage total de ^{225}Ac . Le ^{224}Ra

est le traceur.

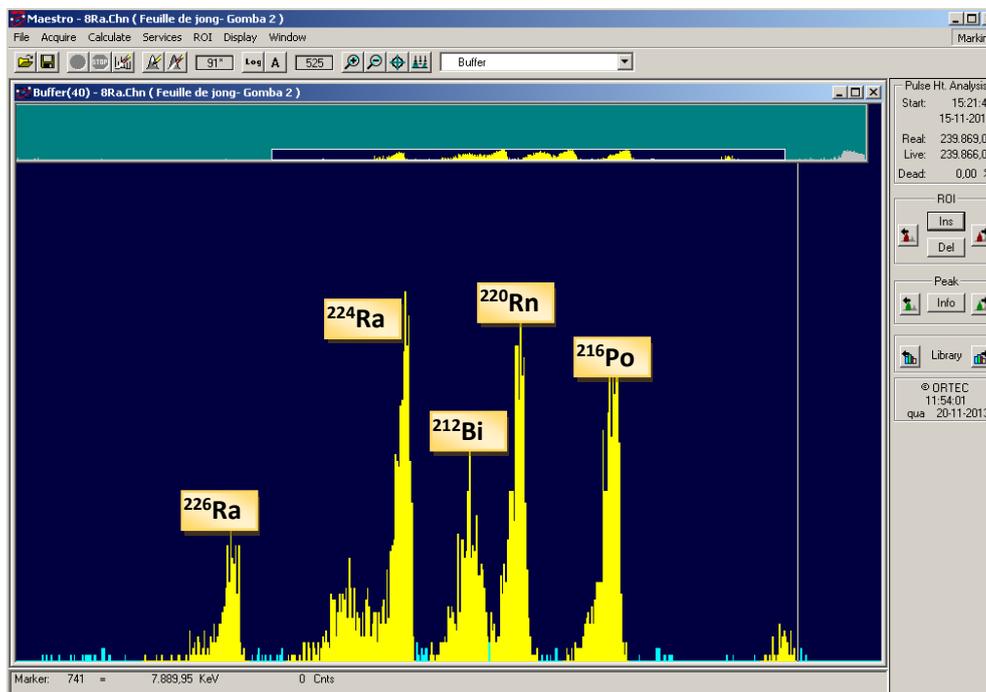


Figure38 : Spectre du radium vu à l'ordinateur

Pour le calcul de l'activité du ^{226}Ra , on tient compte des considérations suivantes :

- La contribution de ^{222}Rn dans le pic de ^{224}Ra est :

$$X(^{222}\text{Rn}) = 0,7 \times N(^{226}\text{Ra}) \left[\frac{1 - e^{-\lambda t_1}}{\lambda t_1} - \frac{1 - e^{-\lambda t_2}}{\lambda t_2} \right] \quad (2-15)$$

- $N(^{226}\text{Ra})$ est le comptage net du ^{226}Ra ;
- λ est la constante radioactive du ^{222}Rn ($\lambda = \frac{\ln 2}{T}$ avec $T=3,83$ jours) ;
- t_1 est le temps de l'électrodéposition ($t_1=1,5$ h) ;
- t_2 est le temps de mesure ($t_2=4$ jours).
- Le traceur (^{224}Ra) est en équilibre avec ^{228}Th ; une fois le thorium extrait, on va calculer l'activité du traceur à partir de l'activité totale du ^{228}Th dans le spectre du thorium, en appliquant la loi de décroissance radioactive depuis la fin de l'éluion jusqu'à la fin de l'électrodéposition (soit environ $20\text{h}=0,859$ jour) et le temps moyen de comptage ($350000\text{s}/2=4\text{j}/2=2$ jours) $\Delta t = 2,859$ jours). Ainsi :

$$A(^{224}\text{Ra}) = A(^{228}\text{Th}) \times \exp\left(-\frac{\ln 2}{T} \times \Delta t\right) ; \quad (2-16)$$

- On calcule le rendement chimique et on en déduit l'activité du ^{226}Ra .

2.6. Calcul du débit de dose gamma absorbée dans l'air et de la dose efficace annuelle par irradiation externe

La concentration de l'uranium, du thorium et du potassium dans le sol induit un débit de dose gamma absorbée dans l'air et une dose efficace annuelle chez les populations. Le débit de dose absorbée D (nGy/h) résulte des concentrations d'activité de ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K . Il s'obtient par :

$$D = 0.462A_U + 0.662A_{Th} + 0.043A_K, \quad (2-17)$$

où:

- D est le débit de dose absorbée dans l'air à 1 mètre du sol en nGy/h ;
- A_U , A_{Th} et A_K sont respectivement les concentrations d'activités de ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K exprimés en Bq;
- Les constantes 0.462, 0.662 et 0.043 sont respectivement les coefficients de conversion de dose de ^{238}U , ^{232}Th et ^{40}K (UNSCEAR, 2000).

La dose efficace annuelle E (mSv/h) s'obtient par :

$$E = D(\text{nGyh}^{-1}) \times 8760(\text{hy}^{-1}) \times 0.2 \times 0.7(\text{SvGy}^{-1}) \times 10^{-6}\text{mSvy}^{-1}. \quad (2-18)$$

- 0.7 (Sv Gy⁻¹) est le coefficient de conversion de la dose absorbée dans l'air à la dose effective annuelle ;
- 0,2 est le facteur d'occupation.

2.7. Facteurs de transfert sol-fougère des radioéléments émetteurs α

Les échantillons de fougère et de sols ont été prélevés au même endroit dans le but d'étudier le transfert sol-fougère des différents radioéléments analysés dans le cadre de ce travail.

Considérant que la concentration du radioélément i dans la plante notée C_i^P est linéairement liée à la concentration C_i^S dans le sol à côté de la zone racinaire de la plante, on peut alors écrire:

$$C_i^P = T_f^i \times C_i^S. \quad (2-19)$$

On définit le facteur de transfert T_f^i par:

$$T_f^i = \frac{\text{concentration d'activité du radioélément } i \text{ masse sec dans la plante}}{\text{concentration d'activité du radioélément } i \text{ masse sec dans le sol}}. \quad (2-20)$$

Dans ce chapitre consacré aux matériels et méthodes utilisés dans le cadre de notre étude, nous avons :

- présenté avec images à l'appui, les instruments et appareils utilisés pendant les manipulations ;
- décrit de manière succincte la technique d'échantillonnage, la méthode de préparation des échantillons, les techniques d'analyse radiochimique des échantillons et la technique de comptage α ;
- ressorti les relations utilisées pour le calcul des concentrations d'activité et leurs incertitudes, des doses ainsi que des facteurs de transfert sol-fougère des radioéléments naturels émetteurs α .

Dans le chapitre 3 qui suit, nous présentons et discutons les résultats et leur analyse.

CHAPITRE 3 : RESULTATS ET DISCUSSION

CHAPITRE 3 : RESULTATS ET DISCUSSION

En utilisant les méthodes et le matériel présentés au chapitre 2, nous avons déterminé les concentrations d'activité (en Bq/kg poids sec) de : ^{210}Po , ^{238}U , ^{235}U , ^{234}U , ^{232}Th , ^{230}Th , ^{228}Th et ^{226}Ra dans le sol superficiel et dans la fougère prélevés aux mêmes endroits dans les localités de Melondo et Ngombas de la zone Lolodorf, Région du Sud Cameroun. A partir de ces concentrations d'activités, les facteurs de transfert sol-fougère des radioéléments naturels émetteurs α ont été estimés ainsi que le débit de dose gamma absorbée dans l'air à un mètre du sol et la dose efficace annuelle par irradiation externe. Dans ce dernier chapitre nous présentons et discutons les résultats expérimentaux obtenus.

3.1. Contrôle qualité de la chaîne spectrométrique

3.1.1. Efficacité des détecteurs

La chaîne spectrométrique utilisée dispose de 06 détecteurs dénommés Ort1, Ort2, ..., Ort6. Pour chacun d'eux, nous avons déterminé l'efficacité à partir d'une source multi α standard constituée de ^{237}Np , de ^{241}Am et de ^{244}Cm . Le Tableau11 donne les résultats obtenus. Ce tableau montre que l'efficacité des détecteurs est presque la même et varie entre 0,203 et 0,237 pour une moyenne de 0,212.

Tableau 11 : Efficacité des détecteurs utilisés pour la spectrométrie α

Détecteur	Ort1	Ort2	Ort3	Ort4	Ort5	Ort6
Efficacité	0,207±0,003	0,21±0,002	0,209±0,001	0,237±0,003	0,203±0,003	0,206±0,003

3.1.2. Rendement chimique

Le rendement chimique a été calculé à partir des traceurs utilisés pour les différents radioéléments naturels émetteurs α . Le Tableau12 donne les valeurs moyennes des rendements chimiques de ces différents radioéléments dans les plantes et dans les sols. A l'observation de ce tableau, le faible rendement chimique est obtenu pour le radium avec 2% dans les sols et à 3% dans les plantes. Ceci montre que la technique utilisée est peu précise pour le radium. L'uranium et le polonium sont les radioéléments qui présentent le rendement chimique le plus élevé soient 74% et 77%

en moyenne respectivement.

Tableau 12 : Valeurs moyennes des rendements chimiques

Radioéléments	Traceur utilisé	Rendement chimique	
		Sol	Plante
Polonium	^{209}Po	0,77±0,04	0,640±0,014
Uranium	^{232}U	0,74±0,02	0,74±0,02
Thorium	^{229}Th	0,483±0,022	0,42±0,02
Radium	^{224}Ra	0,020±0,002	0,030±0,009

3.1.3. Test de la méthode à partir d'un échantillon de référence de l'AIEA

Pour s'assurer de la fiabilité de notre méthode d'analyse, nous avons utilisé un échantillon de référence de l'AIEA pour analyser le polonium-210. Pour cela, nous avons prélevé une masse de 1,559g de cet échantillon de référence que nous avons traité comme tout autre échantillon. Après analyse, la concentration d'activité du ^{210}Po obtenue était de $0,48\pm 0,03\text{Bq/kg}$. A cette date, la mesure de l'AIEA prévoyait $0,42\pm 0,05\text{Bq/kg}$. On peut donc conclure qu'aux incertitudes de mesure près, le résultat obtenu par notre analyse est similaire aux résultats prévus par l'AIEA à la date de mesure. Ce qui justifie la fiabilité de la méthode que nous avons utilisé.

3.2. Concentration des radioéléments naturels émetteurs α dans les sols

3.2.1. Concentration du polonium-210 dans les sols

Le Tableau 13 donne les concentrations d'activité et les concentrations massiques de ^{210}Po dans les échantillons de sols des localités de Melondo et Ngombas. A Melondo, les concentrations d'activité du ^{210}Po varient entre 87 et 176Bq/kg pour une moyenne de 130Bq/kg. A Ngombas, elles sont de l'ordre de 189 à 246Bq/kg, soit une moyenne de 228Bq/kg, qui est presque le double de celle obtenue à Melondo.

Les concentrations massiques du polonium-210 dans les sols sont de l'ordre de $8\times 10^{-13}\text{g/kg}$ à Melondo et de $1,38\times 10^{-12}\text{g/kg}$ à Ngombas. Globalement, on note une forte concentration du ^{210}Po à Ngombas qui est presque le double de celle de Melondo.

Tableau 13 : Concentration du ^{210}Po dans les sols

Localité	Code échantillon	^{210}Po (Bq/kg d.w.)	^{210}Po (g/kg)
Melondo	SM1	81±7	4,8706E-13
	SM2	152±11	9,1399E-13
	SM3	176±15	1,0583E-12
	SM4	112±9	6,7347E-13
	SM5	132±8	7,9373E-13
	Moyenne	130.6±10	7,8531E-13
Ngombas	SNG1	246±24	1,4792E-12
	SNG2	231±18	1,389E-12
	SNG3	251±23	1,5093E-12
	SNG4	189±12	1,1365E-12
	SNG5	224±16	1,3469E-12
	Moyenne	228,2±18,6	1,37219E-12

3.2.2. Concentration des radioisotopes de l'uranium naturel dans le sol

Le Tableau 14 donne les concentrations d'activité (Bq/kg) et les concentrations massiques (g/kg) de ^{238}U , de ^{235}U et de ^{234}U . Les concentrations d'activité moyennes (en Bq/kg) sont : ^{238}U (125,8±11.6), ^{235}U (5±1) et ^{234}U (130,8±10) dans la localité de Melondo ; et de : ^{238}U (170,2±11), ^{235}U (8,6±1.4) et ^{234}U (179±11.8) dans la localité de Ngombas .

Les concentrations massiques moyennes(en g/kg) sont respectivement de : ^{238}U ($1,02 \times 10^{-2}$), ^{235}U ($6,25 \times 10^{-5}$) et ^{234}U ($5,78 \times 10^{-7}$) à Melondo et de : ^{238}U ($1,38 \times 10^{-2}$), ^{235}U (11×10^{-5}) et ^{234}U ($7,9 \times 10^{-7}$) à Ngombas.

L'ensemble de ces résultats montre que l'uranium est plus concentré à Ngombas qu'à Melondo. Cette observation est illustrée dans le diagramme de la Figure 39 qui donne la comparaison entre les concentrations en activité des

radioisotopes de l'uranium naturel dans les sols des localités de Melondo et Ngombas.

De plus, ce diagramme montre que les différents isotopes de U sont presque dans les mêmes proportions dans les deux localités. Ceci met en évidence le fait que l'isotope ^{235}U est naturellement en très faible proportion par rapport à ^{238}U et ^{234}U . Ces proportions sont présentées dans le Tableau 15.

Tableau 14 : Concentrations d'activité et concentration massique des radioisotopes α de l'uranium dans les sols des deux localités

Localité	Echantillon	Concentration en activité (Bq/kg)			Concentration en masse (g/kg)		
		^{238}U	^{235}U	^{234}U	^{238}U	^{235}U	^{234}U
Melondo	SM1	103±7	4±1	106±7	0,0083	5,00E-05	4,684E-07
	SM2	133±11	5±1	135±11	0,0108	6,25E-05	5,966E-07
	SM3	152±12	6±1	156±12	0,0123	7,50E-05	6,894E-07
	SM4	115±9	5±1	124±11	0,0093	6,25E-05	5,480E-07
	SM5	126±9	5±1	133±9	0,0102	6,25E-05	5,877E-07
	Moyenne	125,8±11.6	5±1	130,8±10	0,0102	6,25E-05	5,780E-07
Ngombas	SNG1	161±12	8±1	164±13	0,0130	1,00E-04	7,247E-07
	SNG2	182±9	9±1	188±10	0,0147	1,12E-04	8,308E-07
	SNG3	197±13	10±2	202±12	0,0159	1,25E-04	8,926E-07
	SNG4	133±10	7±1	152±11	0,0108	8,75E-05	6,717E-07
	SNG5	178±11	9±2	189±13	0,0144	1,12E-04	8,352E-07
	Moyenne	170,2±11	8,6±1.4	179±11.8	0,0138	0,00011	7,910E-07

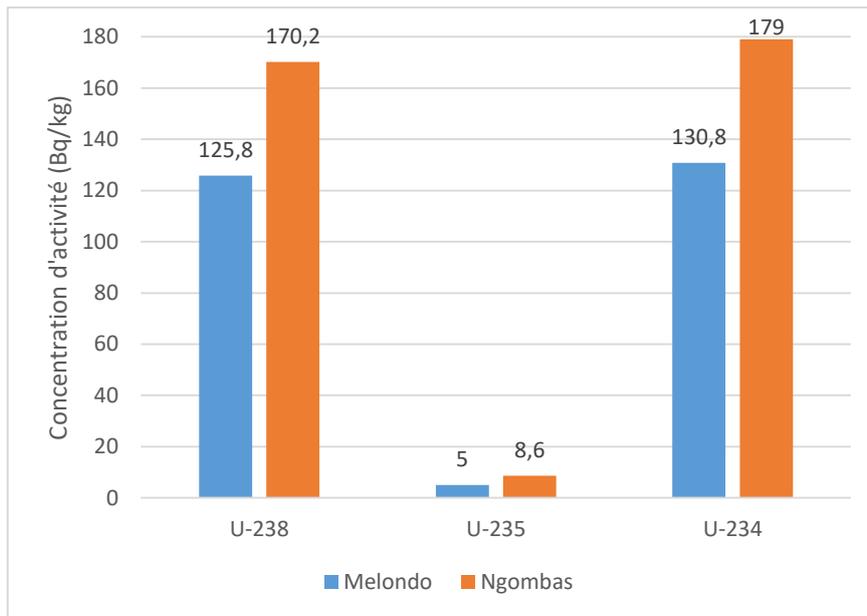


Figure39 : comparaison des concentrations d'activité des isotopes de U dans les sols des deux localités

Tableau 15 : Rapport massique entre les différents isotopes de U (kg/kg)

Rapport	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{235}\text{U}/^{234}\text{U}$	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
Melondo	0,0397	0,0382	1,0397
Ngombas	0,0505	0,0480	1,0517

3.2.3. Concentration des radioisotopes naturels du thorium dans le sol

Le Tableau 16 donne les concentrations d'activité et les concentrations massiques du ^{232}Th , du ^{230}Th et du ^{238}Th dans les sols des deux localités. A Melondo, les concentrations d'activité en Bq/kg de ces radioéléments sont : ^{232}Th (400.2±22), ^{230}Th (145±10.6) et ^{238}Th (381±21). Les concentrations massiques en g/kg sont : ^{232}Th ($9,82 \times 10^{-2}$), ^{230}Th ($1,9 \times 10^{-7}$) et ^{238}Th ($1,25 \times 10^{-11}$). A Ngombas, les concentrations d'activité (Bq/kg) sont : ^{232}Th (200.4±18.6), ^{230}Th (184.4±18.4) et ^{238}Th (228±22) et les concentrations massiques (g/kg) sont : ^{232}Th ($4,92 \times 10^{-2}$), ^{230}Th ($2,4 \times 10^{-7}$) et ^{238}Th ($7,45 \times 10^{-12}$).

Contrairement au cas de l'uranium dans la localité de Ngombas, la concentration d'activité du thorium à Melondo est supérieure à celle de l'uranium. Ceci est illustré dans le diagramme de la Figure40.

Tableau 16 : Concentration du thorium naturel dans les sols des deux localités

Localité	Echantillon	Concentration en activité (Bq/kg)			Concentration en masse (g/kg)		
		²³² Th	²³⁰ Th	²²⁸ Th	²³² Th	²³⁰ Th	²²⁸ Th
Melondo	SM1	440±25	171±11	445±25	0,1080	2,29E-07	1,46E-11
	SM2	390±27	119±9	280±19	0,0957	1,59E-07	9,16E-12
	SM3	412±18	156±12	397±21	0,1011	2,09E-07	1,30E-11
	SM4	371±19	133±10	382±15	0,0910	1,78E-07	1,25E-11
	SM5	388±21	146±11	401±25	0,0952	1,95E-07	1,31E-11
	Moyenne	400.2±22	145±10.6	381±21	0,0982	1,94E-07	1,25E-11
Ngombas	SNG1	205±15	203±15	228±15	0,0503	2,72E-07	7,46E-12
	SNG2	196±26	148±21	248±27	0,0481	1,98E-07	8,12E-12
	SNG3	226±21	216±20	252±32	0,0555	2,89E-07	8,25E-12
	SNG4	171±13	166±17	188±16	0,0420	2,22E-07	6,15E-12
	SNG5	204±18	189±19	222±21	0,0501	2,53E-07	7,27E-12
	Moyenne	200.4±18.6	184.4±18.4	228±22	0,0492	2,47E-07	7,45E-12

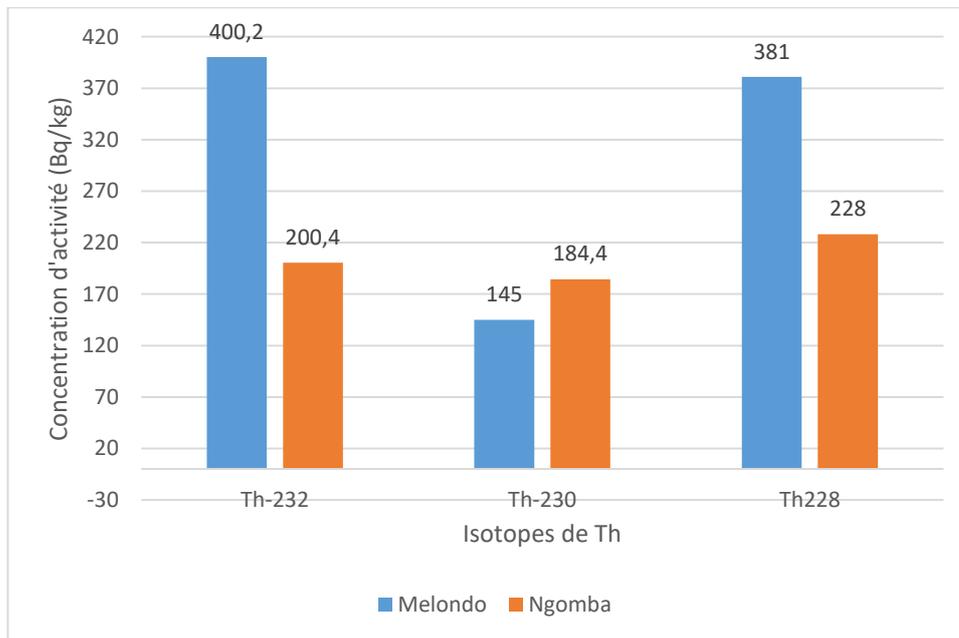


Figure 40 : comparaison des concentrations d'activité des isotopes naturels du Th dans les sols

3.2.4. Concentration du radium-226

Le Tableau 17 donne les concentrations d'activité et massique du ²²⁶Ra dans les sols des deux localités. A Melondo, les concentrations d'activité en Bq/kg poids sec de ²²⁶Ra sont comprises entre 118 et 206 pour une moyenne de 154,4±28 et les

concentrations massiques varient entre $3,22 \times 10^{-9}$ et $5,63 \times 10^{-9}$ pour une moyenne de $4,21 \times 10^{-9}$. A Ngombas, ces concentrations d'activité en Bq/kg poids sec de ^{226}Ra sont comprises entre 118 et 206 pour une moyenne de 154.4 ± 28 et les concentrations massiques varient entre $3,22 \times 10^{-9}$ et $5,63 \times 10^{-9}$ pour une moyenne de $4,21 \times 10^{-9}$.

On remarque que les proportions du radium-226 dans les deux localités sont similaires à celles de l'uranium, c'est-à-dire que sa concentration à Ngombas est presque le double de celle de Melondo. Ces proportions sont à l'inverse de ceux du thorium dont la concentration à Ngombas est presque la moitié de celle de Melondo.

A première vue, on peut dire que l'observation sus-évoquée est logique car le radium-226 est un descendant de l'uranium-238 avec qui il serait en équilibre. Cet équilibre est quelque peu perturbé par la présence du ^{222}Rn (voir fig.2) qui est un gaz, donc susceptible de se volatiliser.

Tableau 17 : Concentration d'activité du ^{226}Ra dans les sols

Localité	Echantillon	^{226}Ra (Bq/kg d.w.)	^{226}Ra (g/kg)
Melondo	SM1	124±27	3,39E-09
	SM2	188±32	5,14E-09
	SM3	206±37	5,63E-09
	SM4	118±21	3,22E-09
	SM5	136±23	3,72E-09
	Moyenne	154.4±28	4,21E-09
Ngombas	SNG1	328±45	8,96E-09
	SNG2	449±61	1,23E-08
	SNG3	531±65	1,45E-08
	SNG4	316±51	8,63E-09
	SNG5	458±56	1,25E-08
	Moyenne	416±57	1,14E-08

3.2.5. Bilan de la concentration des radioéléments naturels émetteurs α dans le sol

Le diagramme de la Figure41 ressort la comparaison entre les concentrations des différents radioéléments dans les sols à Melondo et à Ngombas. Il ressort de ce diagramme que la concentration d'activité est plus élevée pour les radioéléments de la famille de thorium-232 à Melondo, alors qu'elle est plus élevée pour ceux de la famille de l'uranium à Ngombas.

A Melondo, le maximum de concentration d'activité correspond au thorium-232 (^{232}Th) avec une valeur moyenne de 400Bq/kg, tandis qu'à Ngombas, ce maximum correspond au radium-226 (^{226}Ra) avec une valeur moyenne de 416Bq/kg. Le minimum pour les deux localités correspond à l'uranium-235.

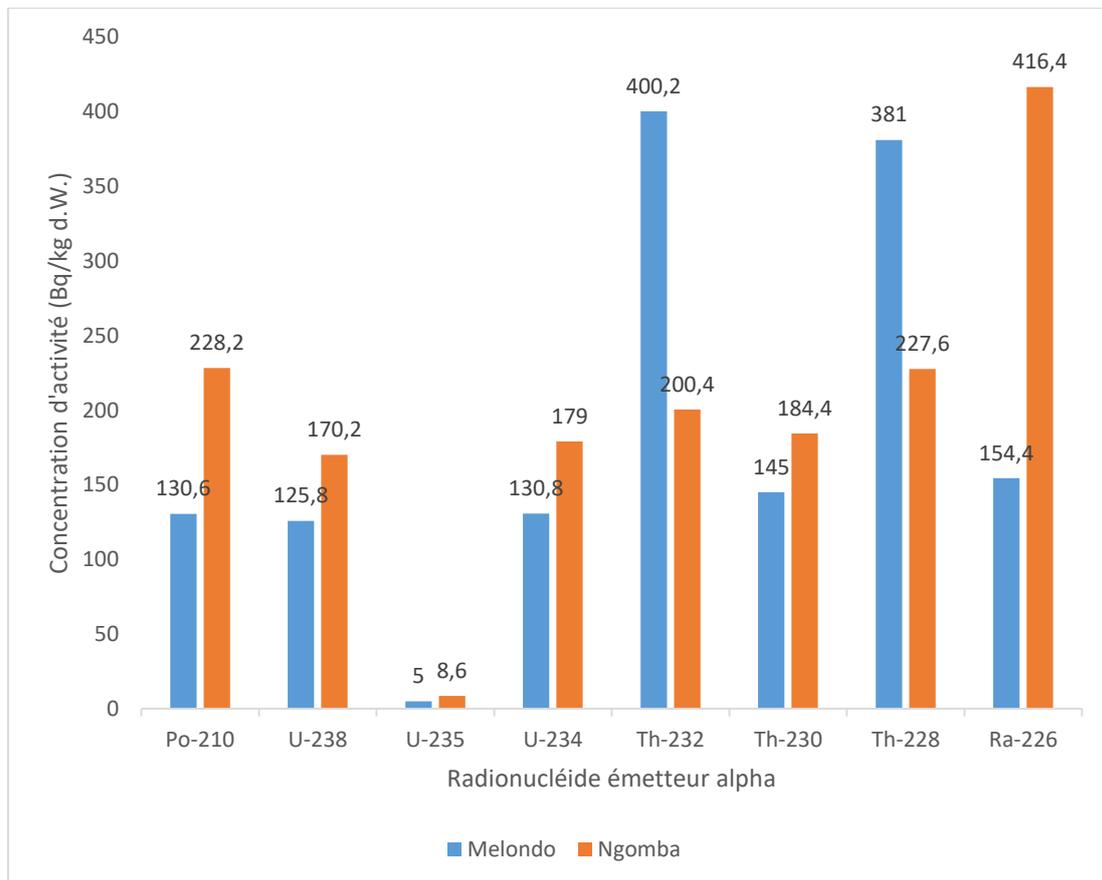


Figure41 : Comparaison des concentrations des radioéléments dans les sols

3.3. Concentration d'activité des radioéléments naturels émetteurs α dans la fougère

3.3.1. Concentration d'activité de ^{210}Po dans la fougère

Le Tableau 18 donne la concentration d'activité du ^{210}Po dans les échantillons de fougère des deux localités. De ce tableau, il apparaît que la concentration du ^{210}Po varie entre 17Bq/kg et 45Bq/kg à Melondo pour une moyenne de 34,6Bq/kg. A Ngombas, cette concentration varie entre 18 et 31Bq/kg pour une moyenne de 24Bq/kg, donc presque la moitié de celle de Melondo. Il convient de signaler que l'absorption du ^{210}Po par les plantes se fait non seulement à travers les racines (absorption racinaire) du fait de la teneur en radioéléments du sol, mais aussi par les feuilles (absorption foliaire) du fait de la déposition atmosphérique des filles du ^{222}Rn , notamment le ^{210}Po et le ^{210}Pb .

Tableau 18 : Concentration d'activité du ^{210}Po dans la fougère

Localité	Echantillon	^{210}P (Bq/kg)
Melondo	FM1	43±2
	FM2	28±1
	FM3	30±2
	FM4	19±2
	FM5	53±7
	Moyenne	34.6±2.8
Ngombas	FNG1	28±1
	FNG2	21±1
	FNG3	29±2
	FNG4	20±2
	FNG5	22±1
	Moyenne	24±1.4

3.3.2. Concentration des radioisotopes de l'uranium naturel dans la fougère

Le Tableau 19 donne les concentrations d'activité de l' ^{238}U , de l' ^{235}U et de l' ^{234}U dans les échantillons de fougère prélevés dans les deux localités. A Melondo, ces concentrations d'activité en Bq/kg varient respectivement de la manière suivante : ^{238}U (0,5- 1), ^{235}U (0,03 - 0,05) ^{234}U (0,5 - 1,1). A Ngombas, elles varient dans

les intervallessuivants : ^{238}U (0,5 - 1,2) ; ^{235}U (0,04 - 0,06) et ^{234}U (0,7 - 1,2).

Le diagramme de la Figure42 fait la comparaison de la concentration d'activité moyenne des trois isotopes naturels de l'uranium dans la fougère prélevée dans les deux localités. A partir de ce diagramme, on remarque que les concentrations des trois radioisotopes de l'uranium dans la fougèresont presque identiques dans les deux localités, l'uranium-235 étant en très faible proportion. La plus forte concentration d'activité correspond à l'uranium-234.

Tableau 19 : Concentrations d'activité de ^{238}U , ^{235}U et ^{234}U dans la fougère

Localité	Echantillon	^{238}U (Bq/kg)	^{235}U (Bq/kg)	^{234}U (Bq/kg)
Melondo	FM1	0.54±0.04	0.03±0.01	0.54±0.04
	FM2	0.94±0.07	0.04±0.01	1.00±0.06
	FM3	0.79±0.06	0.05±0.01	1.10±0.07
	FM4	0.52±0.03	0.04±0.01	0.90±0.05
	FM5	0.6±0.05	0.05±0.01	0.94±0.05
	Moyenne	0.68±0.05	0.042±0.01	0.9±0.05
Ngombas	FNG1	0.84±0.05	0.04±0.01	0.85±0.05
	FNG2	0.91±0.06	0.05±0.01	0.75±0.06
	FNG3	1.20±0.08	0.06±0.01	1.21±0.07
	FNG4	0.53±0.04	0.04±0.01	0.80±0.06
	FNG5	0.62±0.05	0.04±0.01	1.00±0.08
	Moyenne	0.82±0.06	0.046±0.01	0.922±0.064

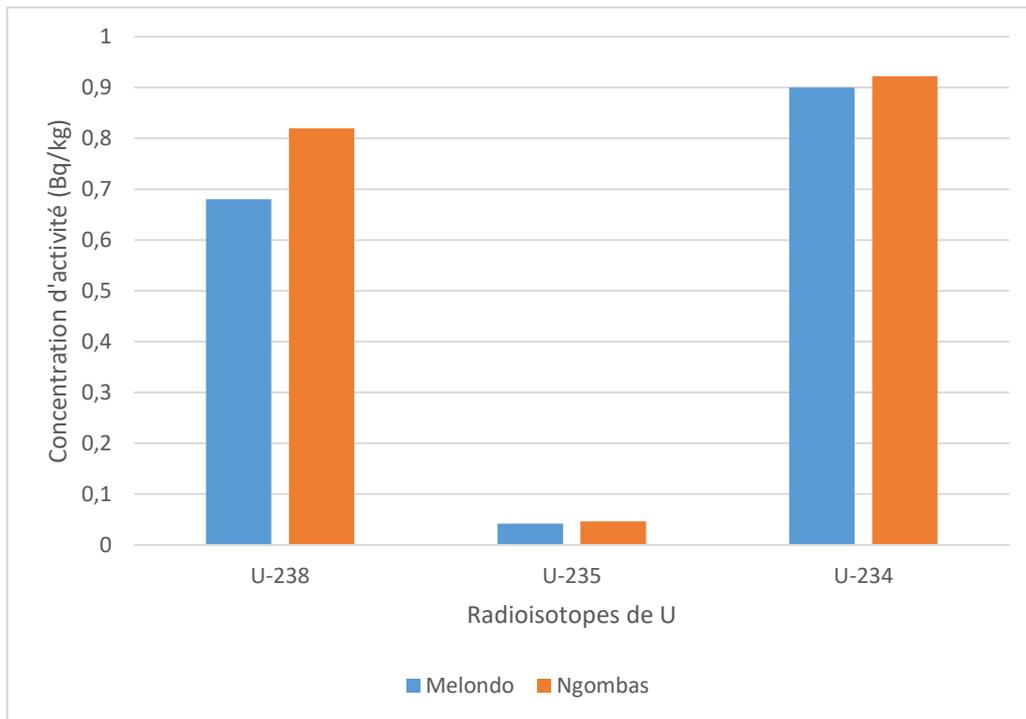


Figure42 : Comparaison des concentrations d'activité de l'uranium dans la fougère

3.3.3. Concentrations d'activité des radioisotopes du thorium naturel dans la fougère

Le Tableau20 donne la concentration d'activité du ^{232}Th , ^{230}Th et ^{228}Th dans la fougère prélevée dans les deux localités. A Melondo, les concentrations d'activité moyennes en Bq/kg sont respectivement : $^{232}\text{Th}(1,15\pm 0,24)$; $^{230}\text{Th}(0,7\pm 0,1)$ et $^{228}\text{Th}(39,4\pm 2,8)$. A Ngombas, elles sont respectivement : $^{232}\text{Th}(0,79\pm 0,16)$; $^{230}\text{Th}(0,94\pm 0,16)$ et $^{228}\text{Th}(15\pm 5)$.

Au regard de ces résultats, on constate que, les concentrations des isotopes de thorium dans les fougères à Melondo sont supérieures à celles de Ngombas. De plus, le digramme de la Figure43 montre clairement que l'isotope le plus abondant dans la fougère est le ^{228}Th . Le thorium-232 et le thorium-230 sont en très faible proportion.

Tableau 20 : Concentrations d'activité du ^{232}Th , ^{230}Th et ^{228}Th dans la fougère

Localité	Echantillon	^{232}Th (Bq/kg)	^{230}Th (Bq/kg)	^{228}Th (Bq/kg)
Melondo	FM1	0.7±0.1	0.62±0.11	19±2
	FM2	1.9±0.3	0.89±0.12	57±5
	FM3	0.92±0.2	0.58±0.10	46±2
	FM4	1.02±0.3	0.76±0.10	52±3
	FM5	1.22±0.3	0.67±0.10	23±2
	Moyenne	1.15±0.24	0.7±0.1	39.4±2.8
Ngombas	FNG1	0.71±0.1	1.02±0.22	13±2
	FNG2	0.59±0.1	0.88±0.14	15±2
	FNG3	0.91±0.2	1.08±0.21	17±3
	FNG4	0.85±0.2	0.75±0.11	12±1
	FNG5	0.87±0.2	0.95±0.12	18
	Moyenne	0.79±0.16	0.94±0.16	15±5

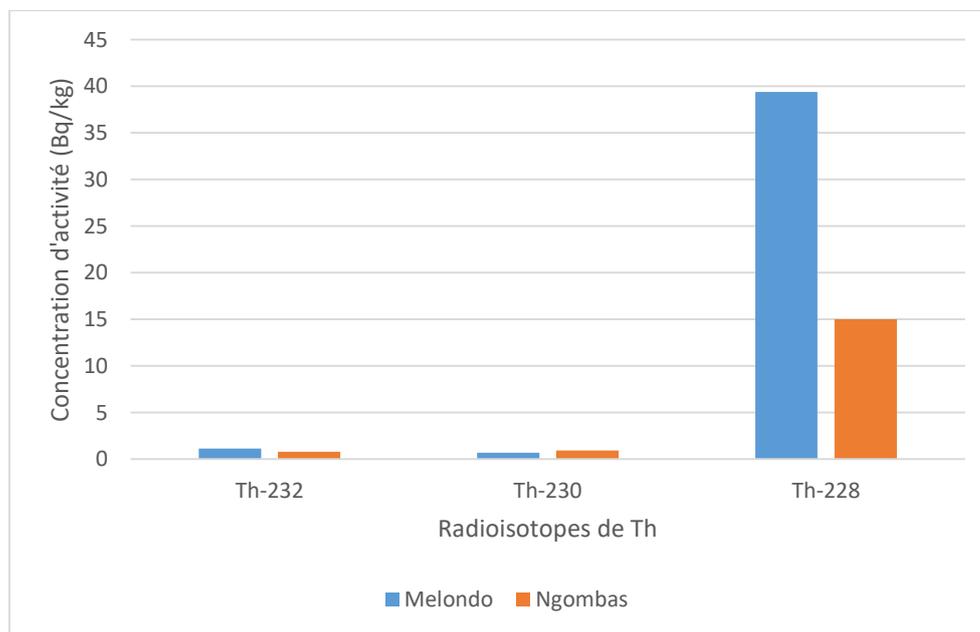


Figure43 : Comparaison des concentrations d'activité des radioisotopes naturels du thorium dans la fougère

3.3.4. Concentration du radium dans les fougères

Le Tableau 21 donne les concentrations d'activité du radium-226 dans les fougères prélevées dans les deux localités. Les moyennes respectives en Bq/kg dans

les deux localités sont 14 ± 3 à Melondo et $13,6 \pm 2,8$ à Ngombas. Ces moyennes sont supérieures à celles obtenues pour les radioisotopes de l'uranium.

Tableau 21 : Concentration d'activité du ^{226}Ra dans la fougère

Localité	Echantillon	^{226}Ra (Bq/kg)
Melondo	FM1	7 ± 2
	FM2	17 ± 4
	FM3	26 ± 5
	FM4	7 ± 2
	FM5	13 ± 3
	Moyenne	14 ± 3
Ngombas	FNG1	9 ± 2
	FNG2	16 ± 3
	FNG3	8 ± 2
	FNG4	14 ± 3
	FNG5	21 ± 4
	Moyenne	$13,6 \pm 2,8$

3.3.5. Bilan des concentrations des radioéléments dans la fougère

Le diagramme de la Figure 44 récapitule les concentrations d'activité des radioéléments naturels émetteurs α dans la fougère à Melondo et à Ngombas. De ce diagramme, il ressort que parmi les radioéléments qui ont une concentration au-dessus de 10 Bq/kg à savoir : le ^{226}Ra , le ^{228}Th et le ^{210}Po , seul le ^{210}Po appartient à la famille de l'uranium-238.

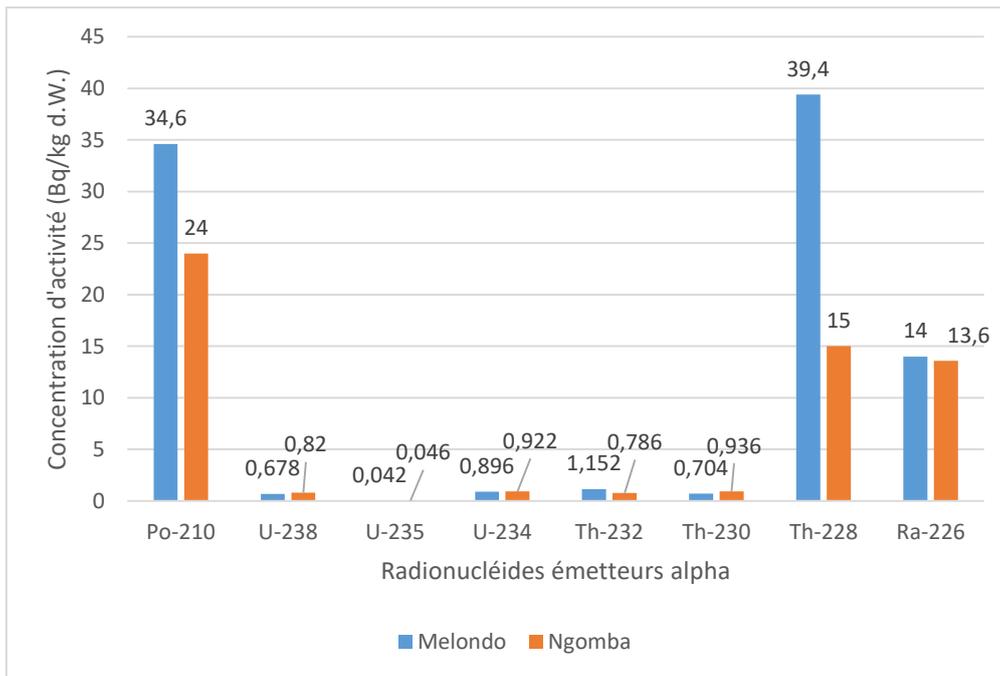


Figure44 : Concentration des radioéléments émetteurs α dans les fougères des deux localités

3.4. Etude du transfert sol-fougère des radioéléments naturels émetteurs α

3.4.1. Concentrations relatives des radioéléments émetteurs α dans les sols et dans la fougère

Dans le but d'observer une éventuelle corrélation entre les concentrations d'activité des différents radioéléments dans le sol et dans la fougère, nous avons, avant de calculer les facteurs de transfert tels que définis au chapitre 2, fait une étude comparative des concentrations desdits radioéléments dans le sol et dans la fougère des deux localités concernées par l'étude. La Figure 45 présente cette comparaison. Il ressort de cette figure que, pour chaque radioélément, la concentration dans le sol est supérieure à la concentration dans la fougère et qu'il existe une relation de proportionnalité entre les deux. Ceci montre qu'il y a une corrélation quasi-linéaire entre les concentrations dans le sol et dans la fougère.

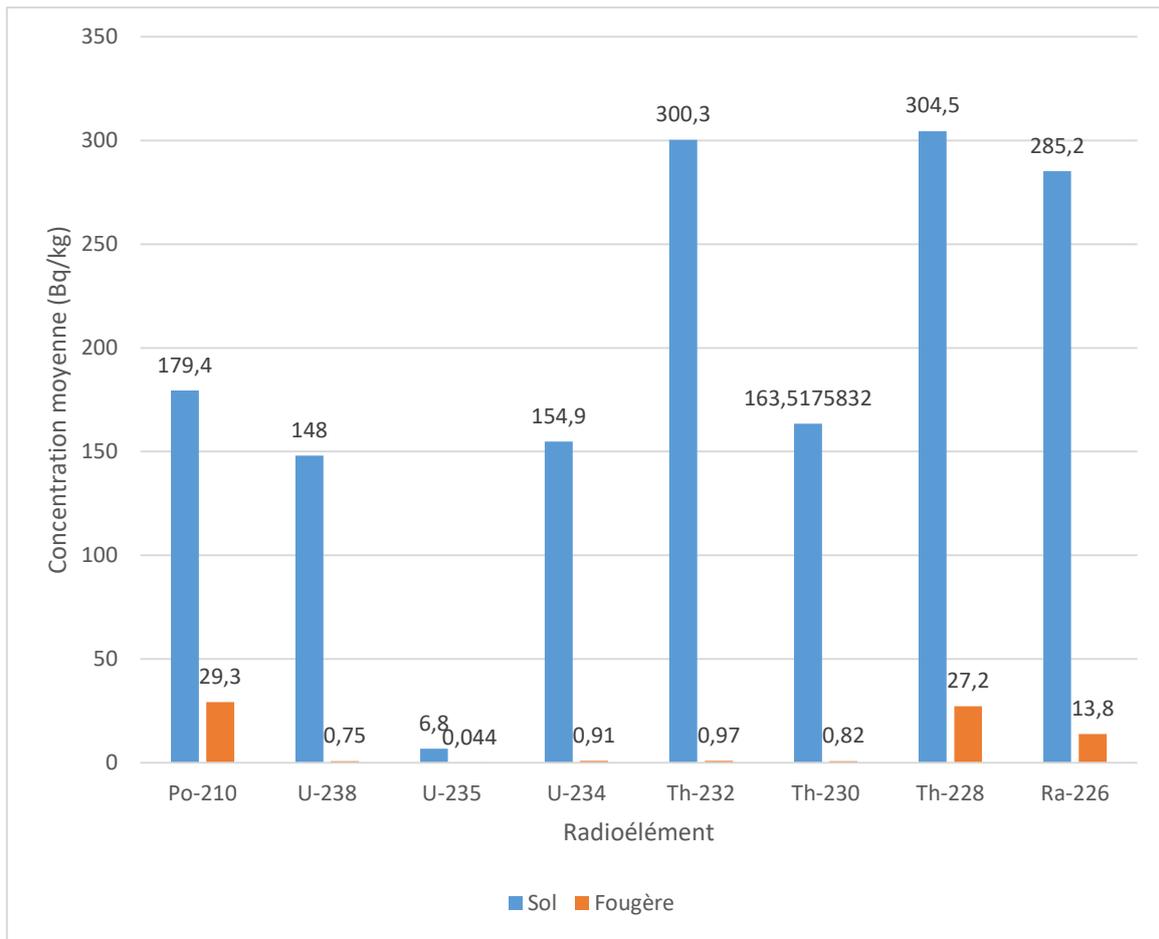


Figure45 : Concentration d'activité des radioéléments dans le sol et la fougère

3.4.2. Calcul des facteurs de transfert sol-fougère des radioéléments émetteurs α

Le Tableau22 donne les facteurs de transfert sol-fougère des radioéléments naturels émetteurs α à différents points d'échantillonnage. Sachant que les facteurs de transfert constituent une distribution log-normale, nous avons calculé la moyenne géométrique (MG) ainsi que l'écart standard géométrique (EG). Ces facteurs, exprimés en kg/kg de masse sèche, varient comme suit : $^{210}\text{P}(0,1-0,53)$; $^{238}\text{U}(0,0035-0,0071)$; $^{235}\text{U}(0,0044-0,01)$; $^{234}\text{U}(0,004-0,0074)$; $^{232}\text{Th}(0,0016-0,005)$; $^{230}\text{Th}(0,0046-0,0075)$; $^{228}\text{U}(0,057-0,2036)$ et $^{226}\text{Ra}(0,0151-0,1262)$. Au regard de ces résultats, il apparaît que le facteur de transfert sol-fougère le plus élevé est celui du ^{210}Po apparemment. Ce qui n'est pas juste, car la concentration du ^{210}Po dans la fougère ne découle pas seulement du sol, mais aussi de la déposition atmosphérique du fait de la désintégration du ^{222}Rn .

Tableau 22 : Facteur de transfert sol-fougère (en kg/kg de masse sèche) en chaque point d'échantillonnage et pour chaque radioélément étudié.

Point de collecte	Facteur de transfert T_f^i (kgkg ⁻¹)							
	Po-210	U-238	U-235	U-234	Th-232	Th-230	Th-228	Ra-226
M1	0,53	0,0052	0,0075	0,0051	0,0016	0,0036	0,0427	0,0565
M2	0,18	0,0071	0,0080	0,0074	0,0049	0,0075	0,2036	0,0904
M3	0,17	0,0052	0,0083	0,0071	0,0022	0,0037	0,1159	0,1262
M4	0,17	0,0045	0,0080	0,0073	0,0027	0,0057	0,1361	0,0593
M5	0,40	0,0048	0,0100	0,0071	0,0031	0,0046	0,0574	0,0956
NG1	0,11	0,0052	0,0050	0,0052	0,0035	0,0050	0,0570	0,0274
NG2	0,09	0,0050	0,0056	0,0040	0,0030	0,0059	0,0605	0,0356
NG3	0,12	0,0061	0,0060	0,0060	0,0040	0,0050	0,0675	0,0151
NG4	0,11	0,0040	0,0057	0,0053	0,0050	0,0045	0,0638	0,0443
NG5	0,10	0,0035	0,0044	0,0053	0,0043	0,0050	0,0811	0,0459
MG	0,16	0,005	0,007	0,006	0,003	0,005	0,079	0,051
EG	1,8	1,2	1,9	1,2	1,4	1,3	2,0	2,9

3.5. Evaluation de l'impact radiologique de la concentration des radioéléments dans le sol.

L'impact radiologique de la concentration des radioéléments dans le sol est évalué par le calcul du débit de dose gamma absorbée à un mètre dans l'air D (nGy/h) et de la dose effective annuelle E(mSv/a).

3.5.1. Débit de dose absorbée et de dose efficace annuelle

Pour le calcul du débit de dose absorbée et de la dose efficace annuelle, nous avons considéré la valeur moyenne de la concentration d'activité du ⁴⁰K obtenue dans ces localités par *Beyala et al., 2010* et *Ele et al., 2010*, qui est de l'ordre de 1000Bq/kg. Les résultats sont présentés dans le Tableau 23. Le débit de dose absorbée moyen est de 296,7nGy/h et la dose efficace annuelle moyenne est de 0,4 mSv.

La valeur moyenne mondiale de la dose efficace annuelle donnée dans les rapports de UNSCEAR est d'environ 0,48 mSv/an. La valeur obtenue dans le cadre de cette étude est de cet ordre. Ceci suppose que le niveau de rayonnement gamma

tellurique dans ces localités est normal.

Tableau 23 : Débit de dose gamma absorbée dans l'air et dose efficace annuelle dues à la concentration des radioéléments dans le sol

Locality	Concentration d'activité en Bq/kgpoids sec			D(nGy/h)	E (mSv/an)
	²³⁸ U	²³² Th	⁴⁰ K		
Melondo	125.8	400.2	1000	348.72	0.428
Ngomba	170.2	200.4	1000	244.71	0.300
Moyenne	148,0	300,3	1000,0	296,7	0,4

3.3.2. Risque radiologique associé

Pour estimer le danger radiologique potentiel, on calcule l'indice de risque radiologique externe H_{ex} et interne H_{in} respectivement à partir des formules suivantes (UNSCEAR, 1993):

$$H_{ex} = \frac{A(^{226}Ra)}{370} + \frac{A(^{232}Th)}{259} + \frac{A(^{40}K)}{4810}, \quad (3-1)$$

$$H_{in} = \frac{A(^{226}Ra)}{150} + \frac{A(^{232}Th)}{259} + \frac{A(^{40}K)}{4810}. \quad (3-2)$$

où $A(^{226}Ra)$, $A(^{232}Th)$ et $A(^{40}K)$ sont respectivement les concentrations d'activité du ²²⁶Ra, du ²³²Th et du ⁴⁰K. Comme critères de tolérance, H_{ex} et H_{in} doivent être inférieurs ou égaux à 1. Les résultats sont consignés dans le Tableau 24. Il ressort de ce tableau que, bien que le débit de dose absorbée dans l'air soit en deçà des limites fixées dans les normes de l'AIEA, les deux localités présentent néanmoins un risque radiologique du fait de l'indice de risque radiologique qui est supérieur à 1

Tableau 24 : Calcul des indices de risque radiologique H_{ex} et H_{in} .

Localité	Concentration d'activité (Bq/kg)			H_{ex}	H_{in}
	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K		
Melondo	154	400.2	1000	2,17	2,78
Ngombas	416	200.4	1000	2,10	3,75
Moyenne	285	300	1000	2,14	3,27

3.6. Discussion

3.6.1. Concentration des radioéléments dans les sols

Les moyennes mondiales de concentrations d'activité de ^{238}U et de ^{232}Th dans les sols sont respectivement de 35 Bq/kg et 30 Bq/kg- (UNSCEAR, 2000), alors que les valeurs obtenues dans cette étude pour les deux radionucléides sont respectivement de 148Bq/kg et 300Bq/kg. Elles sont donc plus élevées que les moyennes mondiales. Nous pouvons alors conclure que les deux zones ont une concentration élevée en uranium et en thorium. Le diagramme de la Figure 41 montre que la concentration du thorium est plus élevée à Melondo tandis que celle de l'uranium est plus élevée à Ngombas. Les études basées sur la spectrométrie gamma faites à Ngombas et Bikoe donnent une concentration d'activité de ^{232}Th dans le sol comprise entre 210 et 910 Bq/kg (Ele Abiama et al., 2010, Beyala et al., 2010). Cette gamme comprend les valeurs obtenues dans la présente étude et confirme le fait que la zone d'étude est supposée être une zone de radioactivité naturelle élevée. Le calcul des valeurs moyennes des rapports de masse $^{235}\text{U} / ^{238}\text{U}$ et $^{234}\text{U} / ^{238}\text{U}$ donnent respectivement 0,046 et 1,05. Ces valeurs sont approximativement les mêmes que les valeurs de la littérature qui sont respectivement de 0,045 et de 1,21 (Barrio, 2012). On peut donc affirmer que l'uranium contenu dans les échantillons analysés est naturel.

La valeur moyenne mondiale de la concentration d'activité du ^{210}Po dans le sol est de 40 Bq/kg (Pradel et al., 2001). Comparativement à cette valeur, les valeurs moyennes obtenues dans cette étude qui sont respectivement de 130 et 228 à Melondo et à Ngombas sont plus élevées. Par contre, elles sont similaires à celle obtenue en Saskatchewan au Canada, autour de la mine d'uranium de Key Lake pour les échantillons de sols prélevés à la même profondeur de surface et dont les résultats étaient dans l'intervalle 20-230 Bq/kg (Thomas, 2000). Ceci confirme les résultats des études de prospection minière à savoir que la zone d'étude est uranifère.

En outre, les valeurs médianes des concentrations d'activité du ^{226}Ra et ^{232}Th dans le sol pour différents pays sont comprises entre 30 et 35 Bq/kg, alors que les valeurs obtenues dans ce travail sont respectivement de 285 et 300 Bq/kg. Ces résultats montrent que les valeurs obtenues dans cette étude sont environ 10 fois supérieures

aux valeurs moyennes mondiales.

3.6.2. Concentration des radioéléments dans les fougères

Le diagramme de la Figure 44 montre que les radioéléments les plus abondants dans les fougères sont ^{210}P , ^{228}Th et ^{226}Ra , avec les concentrations moyennes respectives de $(34,6\pm 2,8)\text{Bq/kg}$, $(34,6\pm 2,8)\text{Bq/kg}$ et $(14\pm 3)\text{Bq/kg}$ à Melondo; et de $(24\pm 1,4)\text{Bq/kg}$, $(15\pm 5)\text{Bq/kg}$ et $(13,6\pm 2,8)\text{Bq/kg}$ à Ngombas.

La concentration d'activité du ^{210}Po dans la majorité des plantes est comprise entre 0,1 et 160 Bq/kg (Coppin et al., 2004). On constate que les valeurs obtenues dans cette étude sont bien dans cet intervalle.

La contamination des plantes par le ^{210}Po est en grande partie due aux dépôts des filles du ^{222}Rn sur les feuilles (Francis et al., 1968 ; Pietrzak et al., 1995 ; Skwarzec et al., 2001), qui dépendent de paramètres tels que : les précipitations, la taille et la forme des feuilles, l'acidité des sols, etc. A Ngombas, les concentrations d'activité gamma de ^{238}U et de ^{232}Th dans certaines plantes comestibles telles que le manioc, le taro, l'arachide et la banane plantain sont respectivement comprises entre 1 et 250 Bq/kg et entre 1 et 700 Bq/kg (Ele et al., 2011). Les concentrations moyennes d'activité des deux radionucléides dans la fougère de la même localité sont respectivement de 0,82 et 0,79 Bq/kg. Ces valeurs sont très faibles par rapport aux précédentes. Cela peut être dû au fait que la fougère ayant des racines très fines, l'absorption des radionucléides se fait plus par les feuilles. Le lavage des échantillons pourrait avoir contribué à réduire ces concentrations.

3.6.3. Facteurs de transfert sol-fougère des radioéléments

Les données du Tableau 22 montrent qu'en dehors du ^{210}Po , du ^{226}Ra et du ^{228}Th , les facteurs de transfert T_f^i ($\text{kg}\cdot\text{kg}^{-1}$) des autres radionucléides sont presque tous égaux à 0,005. Une étude similaire réalisée à Ngombas (Ben-Bolie et al., 2013) a montré que les facteurs de transfert sol-feuille de manioc sont de l'ordre de 1,5 kg/kg à la fois pour ^{238}U et pour ^{232}Th . Cette valeur est très élevée, comparé au facteur de transfert sol-fougère des mêmes radioéléments mesuré dans le cadre de cette étude dont la valeur moyenne est de 0,07 kg/kg.

Quelques facteurs de transfert de ^{238}U proposés par l'AIEA (*AIEA Handbook, 2000*) pour les plantes en milieu tropical sont de 0,048 pour les légumes feuillus et de 0,032 pour les légumineuses. La valeur obtenue dans cette étude pour la fougère est de 0,005 pour ^{238}U . Cette valeur est environ dix fois inférieure aux valeurs déclarées par l'AIEA. En fait, la fougère a des racines très fines, par conséquent, le transfert racinaire est très faible par rapport aux tubercules comme le manioc ou l'igname, et de plus dépend de l'acidité du sol. Le transfert des radionucléides à la fougère est essentiellement foliaire, et donc, la surface de ses feuilles n'étant pas suffisamment grande, elles ne peuvent pas assurer une bonne absorption foliaire. De plus, le lavage des échantillons réduit considérablement la concentration associée à la plante. Ceci confirme le fait que le lavage de la végétation avant la mesure peut réduire le facteur de transfert d'un facteur 10 (*Zarariz et al., 1997*).

Les facteurs de transfert sol-fougère de l'uranium varient entre 10^{-3} et 10^{-2} kg/kg. Les valeurs les plus élevées sont mesurées dans les légumes-tubercules, en particulier dans les tubercules de pomme de terre (*Sheppard et al., 1985*). Les valeurs obtenues dans cette étude pour la fougère varient entre 5×10^{-3} et 7×10^{-3} ; elles sont dans la même plage.

Le facteur de transfert sol-plante du thorium est de $1,8 \times 10^{-3}$ pour les légumes-feuilles et de $1,1 \times 10^{-2}$ pour les herbes (*AIEA, 1994*). La valeur moyenne obtenue dans cette étude pour les trois isotopes du thorium est de $1,2 \times 10^{-2}$, soit à peu près la même que pour les herbes. L'isotope le plus absorbé par la fougère est le ^{228}Th , avec un facteur de transfert de 0,10.

3.6.4. Impact radiologique de la concentration des radioéléments dans les sols

Le calcul du débit de dose absorbée gamma dans l'air à un mètre du sol dont les résultats sont présentés dans le Tableau 15 montre que les valeurs moyennes de ce débit de dose sont de 361,90 nGy/h et 358,21 nGy/h respectivement à Melondo et à Ngombas. Ces résultats sont similaires à ceux obtenus par spectrométrie gamma dans la même localité dont les valeurs étaient comprises entre 150 et 581 nGy/h (*Ele et al., 2010; Beyala et al., 2010*).

Les doses efficaces annuelles sont de 0,428mSv/a et 0,300mSv/a respectivement à Melondo et à Ngombas. Ces valeurs sont en deçà de la valeur limite permise qui est de 1mSv/an (*BSSNo.115, 1996*) et sont comparables à la valeur moyenne mondiale qui est de 0,48mSv/an. On a donc tendance à affirmer dans un premier temps que les deux localités ne présentent pas un risque d'exposition externe pour la population du fait de la concentration d'activité des radioéléments dans le sol.

En outre, les indices de risque radiologique extérieurs H_{ex} et intérieurs H_{in} estimés à partir des radioéléments terrestres sont au-dessus du seuil de tolérance (> 1) ; ce qui montre qu'il existe un risque radiologique associé, bien que, le débit de dose absorbé dans l'air soit normal. L'étude menée par Ele Abiama en 2010 dans les mêmes localités et dans les localités voisines en utilisant la spectrométrie gamma, a conduit à des indices de risque plus élevés jusqu'à 11 à certains endroits.

Par contre, dans certaines localités comme Theran City en Iran, qui n'est pas une zone uranifère, les indices de risque radiologique sont relativement de l'ordre de 0,4 (*Asgharizadeh et al., 2013*), donc relativement bas. Il se dégage donc de cette analyse, que les zones uranifères présentent toujours un risque radiologique et par conséquent nécessiteraient un contrôle radiologique approprié afin de prendre, lorsque cela s'impose des mesures de protection pour les populations qui y vivent.

3.6.5. Etude comparative

Dans le Tableau25, nous présentons les résultats obtenus dans des études menées dans différentes régions du monde sur l'évaluation des concentrations d'activité de ^{238}U , ^{232}Th , ^{210}Po et ^{226}Ra dans les sols.

Il se dégage de ce tableau que les concentrations d'activité de ^{238}U et de ^{226}Ra sont élevées dans des localités reconnues comme étant uranifères telles que Lolodorf au Cameroun, Kurday au Kazhahastan, Kadji Sai au Kyrgyzstan. Ceci est logique, car les sols émanent des roches et donc plus les roches sont uranifères, plus le sol le sera aussi.

Tableau 25 : Concentrations moyennes d'activité (en Bq.kg⁻¹) des radioéléments naturels dans les sols dans différentes régions.

Pays/ localité	Concentration d'activité (Bq/kg d.w.)				Références
	²¹⁰ Po	²³⁸ U	²³² Th	²²⁶ Ra	
Cameroun / Lolodorf	179,4	148	300.3	285.4	Notre travail
Cameroun / Lolodorf			582	206	Ele Abiama et al., 2010
Iran / Theran City	n.a	n.a.	43,4	38,8	F. Asgharizadeh et al., 2013
Kazakhstan / Kurday	177	630	n.a.	180	B. Salbu et al., 2013
Italie/Molise	n.a	55	120	n.a.	Matthias L. et al., 2013
Liban /Nord Liban/	n.a.	40	30	n.a.	O. El Samad et al., 2013
Kyrgyzstan/ Kadji Sai	n.a.	2405	55	2320	O.C. Lind et al.

Dans ce chapitre, les résultats de notre étude portant sur la détermination de la concentration d'activité des radioéléments naturels émetteurs α dans le sol et dans la fougère prélevés dans les localités de Melondo et Lolodorf ont été présentés.

Il ressort de l'analyse de ces résultats que :

- les concentrations d'activité des radioéléments émetteurs α dans les deux localités sont relativement élevées par rapport aux valeurs moyennes mondiales et sont comparables aux valeurs obtenues dans d'autres localités reconnues comme étant uranifères ;
- les facteurs de transfert sol-fougère des radioéléments analysés sont similaires à ceux des herbes en général donnés dans les standards de l'AIEA ;
- le polonium-210 est le radioélément le plus absorbé par la fougère du fait du dépôt foliaire par résorption ;
- bien que le débit de dose absorbée dans l'air soit en deçà des limites fixées dans les normes de l'AIEA, les deux localités présentent néanmoins un risque radiologique du fait de l'indice de risque radiologique qui est supérieur à 1.

CONCLUSION GENERALE

CONCLUSION GENERALE

Afin d'évaluer l'exposition de l'homme aux rayonnements ionisants naturels, il est utile de faire des mesures de radioactivité environnementale. La principale composante de ces mesures est la détermination de la concentration d'activité des radioéléments dans les sols et les plantes. Les mesures de radioactivité environnementale permettent d'évaluer le débit de dose absorbée dans l'air ainsi que la dose efficace annuelle à laquelle les populations sont assujetties, en utilisant les coefficients de dose consignés dans les rapports et publications des commissions scientifiques internationales (UNSCEAR, ICRP, AIEA, etc.). Les différents rapports de UNSCEAR donnent une estimation de l'exposition aux rayonnements naturels. On estime la dose efficace annuelle mondiale à 2,4mSv. Les limites d'exposition sont fixées par les normes de l'AIEA.

Le présent travail est une contribution à l'étude de la radioactivité environnementale au Cameroun. Il s'inscrit dans le domaine des Sciences et Techniques Nucléaires appliquées à l'étude de la radioactivité environnementale. La spectrométrie α a été utilisée pour évaluer les concentrations d'activité de : ^{210}Po , ^{238}U , ^{235}U , ^{234}U , ^{232}Th , ^{230}Th , ^{228}Th , ^{226}Ra dans les échantillons de sols superficiel et de fougère. Ces radionucléides appartiennent aux familles radioactives naturelles de l'uranium-235, de l'uranium-238 et du thorium-232. Ces échantillons ont été prélevés dans les localités de Melondo et Ngombas de l'arrondissement de Lolodorf et ses environs, Région du Sud Cameroun. A partir de ces concentrations d'activité, les facteurs de transfert sol-fougère des radioéléments susmentionnés ont été calculés. Une estimation du débit de dose absorbée dans l'air extérieur, de la dose efficace annuelle ainsi que des indices de risque radiologique a été faite.

Dans les sols, les concentrations d'activité des différents radioéléments naturels varient entre 5 et 416Bq/kg. L'analyse des résultats a montré que les radioéléments de

la famille de l'uranium-238 sont plus concentrés à Ngombas tandis que les radioéléments de la famille du thorium-232 sont plus concentrés dans la localité de Melondo.

Une comparaison avec les résultats des études faites dans d'autres régions du monde montre que les radioéléments de la famille de l'uranium sont plus concentrés dans les zones abritant un minerai d'uranium que dans toute autre zone. Ainsi, une détermination de la concentration des radioisotopes de l'uranium dans une localité peut contribuer à la prospection minière uranifère de celle-ci.

Les débits de dose absorbée dans l'air du fait de la concentration des radioéléments naturels dans le sol sont compris entre 244.71 et 348.72 nGy/h, ce qui correspond à une dose efficace annuelle comprise entre 0.300 et 0.428 mSv/a. Ainsi, bien que les concentrations d'activité des radioéléments soient supérieures aux valeurs moyennes mondiales, la dose efficace annuelle associée reste inférieure à 1 mSv/a qui est la limite permise pour le public d'après les normes internationales de l'AIEA.

Toutefois, les indices de risques calculés montrent qu'il existe tout de même un risque radiologique dans les deux localités objets de cette étude. Il faut donc faire une évaluation approfondie de l'impact radiologique dans ces localités et voir s'il y a lieu de prendre des mesures de protection pour les populations. Il va falloir pour cela étudier l'impact du transfert des radionucléides dans la chaîne des denrées de consommation courantes telles que les cultures vivrières, les faunes terrestres, aquatiques et l'eau.

Dans la fougère, les concentrations d'activités mesurées sont comprises entre 0,042 Bq/kg et 39,4 Bq/kg, le maximum correspondant au ^{228}Th et le minimum à l' ^{235}U . Les facteurs de transfert sol-fougère des radioéléments analysés varient entre 0,03 et 0,16 kg/kg. L'analyse des résultats montre que ces facteurs de transfert sont comparables à ceux des herbes en général. Le facteur de transfert sol-fougère le plus élevé est celui du ^{210}Po , soit 0,16 kg/kg et le plus bas est celui du ^{232}Th , soit 0,03 kg/kg.

Globalement, les résultats obtenus dans le cadre de cette étude sont comparables à ceux obtenus dans d'autres études faites de par le monde dans les conditions

similaires. Ceci a été mis en évidence grâce à une étude comparative des concentrations d'activité des radioéléments naturels émetteurs α dans les sols et dans les plantes de différentes régions du monde.

Bien que la dose efficace annuelle résultante de la concentration d'activité des radioéléments naturels dans le sol soit en deçà du seuil fixé dans les normes de l'AIEA, il n'en demeure pas moins qu'il existe un risque radiologique au regard des indices de risque externe et interne qui ont été calculés. Ceci nécessite une étude plus approfondie de l'impact radiologique sur la population et l'environnement de la localité de Lolodorf par des techniques modernes, notamment l'utilisation des codes RESRAD (Residual Radioactivity).

En perspective, nous comptons poursuivre cette étude en utilisant les codes RESRAD BIOTA et RESRAD ONSITE, développés par le Laboratoire National d'Argonne aux Etats-Unis pour étudier l'impact radiologique réel sur les êtres vivants animaux et végétaux de la localité de Lolodorf. Une étude pareille pourrait s'étendre dans toutes les zones uranifères du Cameroun, dans le but d'en faire une base de données constituant le niveau de référence pour l'étude d'impact environnemental des futures activités d'exploitation minière uranifère au Cameroun.

**REFERENCES
BIBLIOGRAPHIQUES**

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Absalom , J.P ., Young , S.D., Crout , N.M.J., Nisbet , A.F., Woodman , R.F.M., Smolder, E.S., and Gilletta, G., 1999. Predicting Soil to Plant Transfer of Radiocesium Using Soil Characteristics, *International Journal of Environmental Science and Technology*, 33, 1218-1223.
- AEC, 1988. Effect of soil type on radionuclides in plants. Atomic Energy of Canada, Déc. 1988, Info 0290, Research report, 39 p.
- AIEA Handbook, 2000. Parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. Technical reports series N°472.
- Akhtar, N., Tufail, M. and Ashraf, M, 2005. Natural environmental radioactivity and estimation of radiation exposure from saline soils, *International Journal of Environmental Science and Technology*, 1(4), 279–285.
- Asgharizadeh, F., Ghannadi, M., Samani, A. B., Meftahi, M., Shalibayk, M., Sahafipour S. A. and Gooya E. S., 2013. Natural radioactivity in surface soil samples from dwelling areas Tehran city, Iran, *Radiation Protection Dosimetry* 156, 376–382.
- Bario, A., 2012. Determination of uranium isotopes in environmental samples, *Journal of Radionuclear Chemistry*, 295, 621-631.
- Beck, H.L., Decompo, J. and Gologak, J., 1972. In situ Ge(Li) and NaI (TI) gamma ray spectrometry. Health and Safety Laboratory AEC, Report HASL New York, 258.
- Ben-Bolie, G. H., Ele A.P., Owono, A.P., El Khoukhi, T. and El Moursli R.C, 2013. Transfer of ^{238}U and ^{232}Th from soil to plant in a high background radiation area of the southwestern region of Cameroon, *Radiation Protection Dosimetry*, 1–5.
- Beyala Ateba J. F., Owono Ateba P., Ben-Bolie G. H., Ele Abiama P., Abega C. R. and Mvondo S., 2010. Natural background dose measurements in south Cameroon. *Radiation Protection Dosimetry*, 1–8.
- Beyala, A.J.F., Owono A.P., Ben-Bolie G.H., Ekobena F.H., Ele A.P., Abega C.R. and Mvondo, S., 2011 Determination of Uranium in Rock and Soil of South Cameroon. *Radioisotope* 10, 60.
- BSS, 1996. International Basic Safety Standards for Protection against Ionizing Radiation and for the Safety of Radiation Sources. International Atomic Energy Agency, Vienna.
- Bowen H.J.M., 1979. Environmental chemistry of the elements. Academic Press.
- Carvalho, F.P., Oliveira, J. M., Lopes, I., Batista, A., 2007. Radionuclides from past uranium mining in rivers of Portugal. *Journal of Environmental Radioactivity* 98, 298-314.
- Carvalho, F.P., 1995. ^{210}Po and ^{210}Pb intake by the portuguese population: the contribution of seafood in the dietary intake of ^{210}Po and ^{210}Pb . *Health Physics* 69,

- 4.
- Commissariat à l'Energie Atomique, 2001. Dossier Uranium.
- Coppin, F. and Roussel-Debet S., 2004. Comportement du ^{210}Po en milieu terrestre : revue bibliographique. Radioprotection 39.
- Choppin G.R. et Wong P.J.,1998. The chemistry of actinide behaviour in marine systems. Aquatic Geochemistry, 4: 77-101.
- Cuney, M., Leroy, J. et Pagel, M., 1992. L'uranium, collection « Que sais-je ? » Presses Universitaires de France.
- Desideri, D., Meli, M.A., Roselli, C., 2010. Natural and artificial radioactivity determination of some medicinal plants. Journal of Environmental Radioactivity 101, 751-756.
- Ele Abiama, P., Owono, A.P., Ekobena, F.H., Ben-Bolie, G.H. and El Khoukhi T., 2010. High background radiation investigated by gamma spectrometry of the soil in the southwestern region of Cameroon. Journal of Environmental Radioactivity 101, 739-743.
- Ele Abiama P., Ben-Bolie G.H., Amechmachi N., Najibb F., El Khoukhi T., Owono Ateba P., 2012. Annual intakes of ^{226}Ra , ^{228}Ra and ^{40}K in staple foodstuffs from a high background radiation area in the southwest region of Cameroon. Journal of Environmental Radioactivity, 110 (2012) 59-6.
- El Samad, Baydoun O, Nsouli R, Darwish T, 2013. Determination of natural and artificial radioactivity in soil at North Lebanon province. Journal of Environmental Radioactivity 125, 36-39.
- Francis C.W., Chesters G. and Erhardt W.H., 1968. ^{210}Po entry into plants. Journal of Environmental Sciences and Technology, 2(9), 691-695.
- Fernando P. C., Joao M.O., Irene L. and Aleluia B, 2007. Radionuclides from past uranium mining in rivers of Portugal. Journal of Environmental Radioactivity 98, 298-314.
- Gambini D.J., Granier R., 1997. Manuel de radioprotection, Editions Lavoisier.
- Goldstein L., 1936. Sur la théorie de la désintégration radioactive α . J. Phys. Radium 7(12), 527-532.
- Gueniot B., Munier-Lamy, C.,1988. Geochemical behavior of uranium in soils, part I. Influence of pedogenetic processes on the distribution of uranium in aerated soils. Journal of Geochemistry Exploration 31, 21-37.
- Guogang J., Giancarlo T., Leandro M., 2009. Concentration of ^{238}U , ^{234}U , ^{235}U , ^{232}Th , ^{230}Th , ^{228}Th , ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{224}Ra , ^{210}Po , ^{210}Pb and ^{212}Pb in drinking water in Italy: reconciling safety standards based on measurements of gross α and β . J of Environmental Radioactivity 100, 941-949.
- Hans, H.S., Hans, O.J., Anne, M.T.K., Gerda, E., 2006. Depleted uranium and cancer in anish Balkan veterans deployed 1992-2001. European Journal of Cancer 42, 2355-2558.
- ICRP (International Commission on Radiological Protection), 1993. Age-dependent

- doses to members of the public from intake of radionuclides, Oxford, Publication 67.
- ICRP (International Commission on Radiological Protection), 2007. The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. Publication 103.
- IRSN, France, 2010. Le radium et ses utilisations. Fiche technique.
- Karunakara N., Avadhani D.N., Mahesh H.M., Somashekarappa H.M., Narayana Y. and Siddappa K., 2000. Distribution and enrichment of ^{210}Po in the environment of Kaiga in South India. *J Environ Radioactiv* 51(3), 349-362.
- Lapham S.C., Millard J.B. and Samet J.M., 1989. Health implications of radionuclide levels in cattle raised near U mining and milling facilities in Ambrosia Lake, New Mexico. *Health Phys* 56(3), 327-340.
- Lung M, 1997. A present review of the nuclear fuel cycles. Final report of the European Commission on Nuclear Science and Technology, 302p.
- Karunakara N, Avadhani DN, Mahesh HM, Somashekarappa HM, Narayana Y et Siddappa K, 2000. Distribution and enrichment of ^{210}Po in the environment of Kaiga in South India. *Journal of Environmental Radioactivity* 51(3), 349-362.
- Krauskopf K.B., 1986. Thorium and rare earth metals as analogs for actinide elements. *Chemical Geology* 55, 323-335.
- Kurtio, P., Salonen, L., Ilus, T., Pekkanen, J., Pukkala, E., Auvinen, A., 2006. Well water radioactivity and risk of cancers of the urinary organs. *Environmental Research* 102, 333-338.
- Martin, P., Ryan B., 2004. Natural-series radionuclides in traditional Aboriginal foods in tropical northern Australia: a review. *Sci World J* 4, 77-95.
- Maurizot, P., Abessolo, A., Feybesse, J.L., Johan, V., Lecomte, P., 1986. Etude et prospection minière du Sud-Ouest Cameroun. Synthèse des travaux du BGRM, de 1978 à 1985.
- Malanca, A., Gaidolfi, L., Psina, V., Dallara, G., 1996. Distribution of ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K in soil of Rio Grande do Norte (Brazil). *J. of Environmental Radioactivity*. 30, 55-67.
- Matthias L, Wolfango P, Pavel PP, Valeria F, Piergiorgio A, Marco B, Francesco B, Angela C, 2013. Radionuclide mapping of the Molise region (Central Italy) via gamma-ray spectrometry of soil samples: relationship with geological and pedological parameters. *Journal of Radioanal Nuclear Chemistry* (2013) 298:317-323.
- Martin, P., Ryan B., 2004. Natural-series radionuclides in traditional Aboriginal foods in tropical northern Australia: a review. *Sci World J* 4, 77-95.
- Meinrath, A., Schneider, P., Meinrath, G., 2003, 2003. Uranium ores and depleted

- uranium in the environment, with reference to uranium in the biosphere from the Erzgebirge/Sachsen, Germany. *Journal of Environmental Radioactivity* 64, 175-193.
- Meinrath, A., Schneider, P., Meinrath, G., 2003. Uranium ores and depleted uranium in the environment, with reference to uranium in the biosphere from the Erzgebirge/Sachsen, Germany. *Journal of Environmental Radioactivity* 64, 175-193
- Ministère des mines, 2011. Uranium au Cameroun-quelques informations pratiques. Brochure d'informations.
- Mvondo, S., Ben-Bolie, G.H., Ema'a Ema'a, J.M., OWONO ATEBA, P., Ele, A.P., Beyala, A.J.F., 2007. Study of soil-fern transfer of naturally occurring α emitting radionuclides in the Southern Region of Cameroon. *Journal of Environmental Radioactivity* 180 (2017) 114–119.
- Ngachin, M., Garavaglia, M., Giovani, C., Kwato Njock, M.G. and Nourreddine, A., 2007. Radioactivity level and soil radon measurement of a volcanic area in Cameroun. *J of environmental radioactivity* 99, 1056-1060.
- Olivera, J. M. and Fernando, P.C., 2006. Sequential extraction procedure for determination of uranium, thorium, radium, lead and polonium radionuclides by α spectrometry in environmental samples. *Czechoslovak Journal of Physics* 56.
- Oregon State University : Chemistry 418/518 Nuclear Chemistry Spring 2012 - Chapter 7 - A Decay.
- Owono, A. P., 2010. Multi-group approximation, scattering and calibration coefficients, uncertainty estimates and detection limits of a NaI(Tl)-based gamma spectrometry setup for low-level activity analysis. *Journal of Environmental Radioactivity* 101, 692–699.
- Patra, A. C., Sahoo, S.K., Tripathi, R.M., Puranik, V.D., 2013. Distribution of radionuclides in surface soils, Singhbhum Shear Zone, India and Associated dose. *Environmental Monitoring and Assessment* 185, 7833-7843.
- Paulin R., 1997. Radionucléides naturels. In : *toxique nucléaire*. P. Galle, 2^e édition, Masson, pp. 3-22.
- Pradel, J., Zettwoog, P., Dellerio, N., Beutier, D., 2001. Le polonium 210, un repère naturel important en radioprotection. *Radioprotection* 36, 401-4016.
- Pietrzak-Flis Z. and Skowronska-Smolak M., 1995. Transfer of ^{210}Pb and ^{210}Po to plants via root system and above-ground interception. *Science of Total Environment* 162, 139-147.
- Righi, S., Guerra, R., Jeyapandian, M., Verita`, S. and Albertazzi, A., 2009. Natural radioactivity in Italian ceramic tiles. *Radioprotection* 44(5), 413–419 (2009).
- Saïdou, François B., Laedermann J.P., Kwato N.M.G. and Froidevaux P., 2008. A comparison of α and gamma spectrometry for environmental natural radioactivity surveys. *Applied Radiation and Isotopes* 66, 215–222.

- Salahel, D. K., 2011. Determination of ^{210}Po in various foodstuffs and its annual effective dose to inhabitants of Qena City, Egypt. *Science of the Total Environment* 409, 5301–5304.
- Santos P.L., Gouvea R.C., Dutra I.R., Gouvea V.A., 2002. Accumulation of ^{210}Po in foodstuff cultivated in farm around the Brazilian mining. *Journal of Environmental Radioactivity* 9, 11-141.
- Selvasekarapandian, S., Svakumar, R. Manikandan, M.N., Meenakshisundanram, V., Raghunath, V.M., Gajendran, V., 2000. Natural radionuclide distribution in Gudalore, Indian Apply Radiation and Isotopes. 52, 299-306.
- Sénéghal D., 2016 ; Physique Subatomique. UNIVERSITÉ DE SHERBROOKE.
- Shinichiro, U., Hildegard, V., Lieve S., May V.H., Jean, W., and Erik S., 2016. Variability of the soil-to-plant radiocaesium transfer factor for Japanese soils predicted with soil and plant properties. *Journal of Environmental Radioactivity* 153, 51-60.
- Sheppard, M.I. and Sheppard, S.C., 1985. The plant concentration ratio concept as applied to natural U. *Health Physics*, 48(4): 494-500.
- Skwarzec, B., Struminska, D.I., Ulatowski J. and Golebiowski, M., 2001. Determination and distribution of Po-210 in tobacco plants from Poland. *J Radioanal Nuc Chem* 250(2), 319-322.
- Skwarzec, B., 1997. Polonium, uranium and plutonium in the southern Baltic Sea. *Ambio* 26(2), 113-117.
- Sussa, F. V., Damatto, S. R., Alencar, M. M., Mazzilli, B. P., Silva, P. S.C., 2013. Natural radioactivity determination in sample of *Peperomia pellucid* commonly used as a medicinal herb. *J of Environmental Radioactivity*, 116, 148-151.
- Thomas, P.A., 2000. Radionuclides in the terrestrial ecosystem near a Canadian uranium mine- Part I: distribution and doses. *Health Phys.* 18(6), 614-624.
- Tuukka, T., Eila, K. and Anja, H., 2011. ^{210}Pb and ^{210}Po in Finnish cereals. *Journal of Environmental Radioactivity*, 102, 438-442.
- UNSCEAR, 2000. Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Report to the General Assembly on the Effects of Atomic Radiation. United Nations, New York.
- UNSCEAR, 1993. Sources and Effects of Ionizing Radiation. Report to General Assembly with Scientific Annexes, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. United Nations, New York.
- UNSCEAR, 1988. Sources, Effects and Risks of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Report to the General Assembly on the Effects of Atomic Radiation. United Nations, New York.
- Veronique, Malard, Odette, Prat, Elisabeth, Darrouzet, Frederic, Berenguer, Nicole, Sage, Eric, Quemeneur, 2005. Proteomic analysis of the response of human lung cells to uranium. *Proteomics* 5, 4568-4580.

Zararsiz, A., Kirmaz, R. et Arıkan, P., 1997. Field study on thorium uptake by plants within and around of a thorium ore deposit. *Journal of Radioanal Chemistry*, 222 (1-2), 257-262.

ANNEXES

Annexe 1 : Effet tunnel et la radioactivité alpha

1. Généralité sur l'effet TUNNEL

L'effet TUNEL est le phénomène qui se produit lorsqu'une particule d'énergie E_0 aborde une barrière de potentiel de hauteur V_0 , avec $E_0 < V_0$ et de largeur a . Dans ce cas, le potentiel $V(x)$ est définie par :

$$V(x) = \begin{cases} f(x) > E_0 \text{ si } 0 \leq x \leq a \\ 0 \text{ partout ailleurs} \end{cases} \quad (\text{A-1})$$

1.1. Cas où $V(x)=V_0=\text{constante}$

$$V(x) = \begin{cases} V_0 \text{ si } 0 \leq x \leq a \\ 0 \text{ partout ailleurs} \end{cases} \quad (\text{A-2})$$

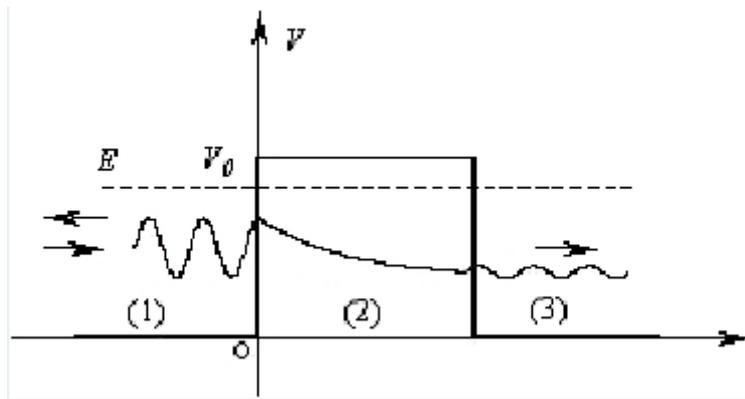


Figure 46 : Variation du potentiel pour une barrière carrée

Classiquement, la particule ne peut pas traverser la barrière car $E < V_0$. L'examen quantique du problème consiste à résoudre l'équation de Schrödinger stationnaire vérifiée par la fonction d'onde $\varphi(x)$ associée à la particule, soit :

$$\Delta\varphi + \frac{2m}{\hbar^2}(E - V)\varphi = 0 \quad (\text{A-3})$$

Les solutions de l'équation de Schrödinger dans les régions (1), (2) et (3) sont respectivement données par :

$$\begin{cases} \varphi_1(x) = ae^{iax} + a'e^{-iax} \\ \varphi_2(x) = be^{\beta x} + b'e^{-\beta x} \\ \varphi_3(x) = ce^{iax} + c'e^{-iax} \end{cases} \quad (\text{A-4})$$

avec $\alpha = \frac{\sqrt{2mE}}{\hbar}$ et $\beta = \frac{\sqrt{2m(V-E)}}{\hbar}$.

Il n'y a pas de réflexion dans la région (3) donc $c'=0$. La détermination des constantes se fait en appliquant la continuité de la fonction d'onde et de sa dérivée primaire aux limites des régions (en $x=0$ et en $x=a$). Le coefficient de transmission qui représente la probabilité pour que la particule traverse la barrière est défini par :

$$T = \left| \frac{c}{a} \right|^2 = \frac{4\alpha^2\beta^2}{4\alpha^2\beta^2 + (\alpha^2 + \beta^2)sh^2(\beta a)} \quad (A-5)$$

Contrairement aux prévisions classiques, la probabilité que la particule traverse la barrière n'est pas nulle.

Pour une barrière suffisamment épaisse comme c'est la majorité des cas pratiques ($\beta a \gg 1$), on a :

$$T = 16E \frac{(V_0 - E)}{V_0^2} e^{-2\beta a} \quad (A-6)$$

1.2. Cas d'un potentiel quelconque ($V=V(x)$)

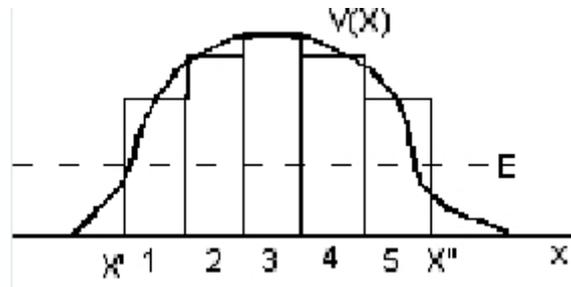


Figure 47 : Barrière de potentiel variable

On traite le problème en considérant que la barrière est une succession de barrières rectangulaires d'épaisseur dx et de hauteur $V(x)$. Le coefficient de transmission dans ce cas est appelé **transparence**.

La transparence totale est la somme des transparences, soit :

$$T = T_1 \times T_2 \times T_3 \times \dots \times T_n \quad (A-7)$$

En prenant le logarithme de l'équation (A-7), on obtient :

$$\ln(T) = \ln T_1 + \ln T_2 + \dots + \ln T_n \quad (A-8)$$

En passant à la limite d'une subdivision infiniment fine, on obtient l'intégrale

suivante :

$$\ln T = -\frac{2}{\hbar} \int_0^a \sqrt{2m(V(x) - E)} dx \quad (\text{A-9})$$

2. Application à l'émission alpha

A l'intérieur du noyau, la particule alpha est soumise à de très importantes forces nucléaires. La forme exacte du potentiel y afférent est inconnue. On suppose que ce potentiel est nul au-delà du rayon R du noyau.

En dehors du noyau, la force dominante est la force coulombienne. Sachant qu'après désintégration alpha, le noyau fils porte la charge $Z'e$, avec $Z=Z'+2$ étant la charge du noyau père. Le potentiel coulombien auquel est soumise la particule alpha au-delà de R dans un système d'unité où $4\pi\epsilon_0 = 1$ est :

$$V(r) = \frac{2z'e^2}{r} \quad (\text{A-10})$$

Où r est la distance qui sépare la particule alpha du centre du noyau. La variation générale du potentiel est donnée par :

$$V(r) = \begin{cases} -U & \text{si } 0 \leq r \leq R \\ \frac{2z'e^2}{r} & \text{si } r > R \end{cases} \quad (\text{A-11})$$

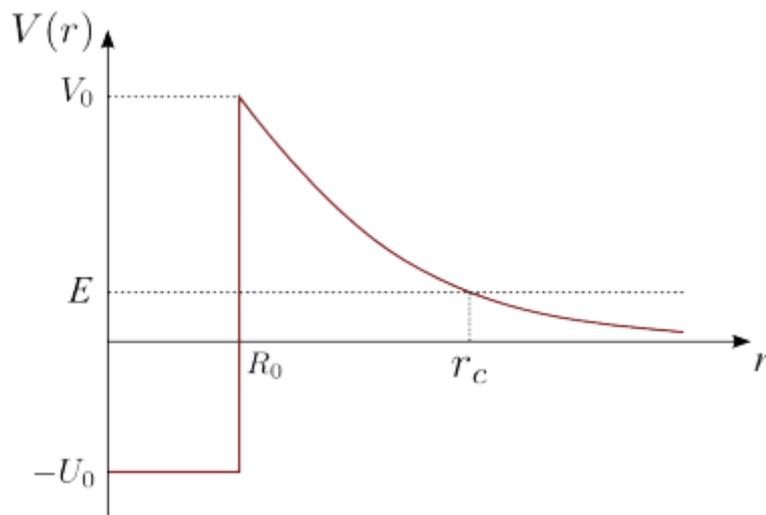


Figure 48 : Variation du potentiel de la particule alpha autour du noyau atomique

Le rayon critique r_c pour lequel l'énergie E de la particule alpha est égale à

l'énergie potentielle est donnée par :

$$r_c = \frac{2Ze^2}{E} \quad (\text{A-12})$$

La particule alpha fait des va-et-vient sur un trajet de longueur $2R$ avec une vitesse v . La fréquence de collision avec la barrière est :

$$\omega = \frac{v}{2R} \quad (\text{A-13})$$

Le système est à symétrie sphérique, en faisant le changement de fonction $\phi(r) = \frac{\psi(r)}{r}$, l'équation de Schrödinger associée à ϕ s'écrit :

$$\frac{d^2\phi}{dr^2} + \frac{8\pi^2m}{\hbar^2}(E - V(r))\phi = 0 \quad (\text{A-14})$$

Ceci se ramène au problème à une dimension de variable r . La transparence logarithmique est alors donnée par :

$$\ln T = -\frac{2}{\hbar} \int_R^{r_c} \sqrt{2m(V(r) - E)} dr \quad (\text{A-15})$$

On définit le facteur de Gamov par :

$$G = -\ln T = \frac{2}{\hbar} \int_R^{r_c} \sqrt{2m(V(r) - E)} dr \quad (\text{A-16})$$

Le calcul de cette intégrale dans le cadre du potentiel coulombien donne :

$$\ln T = -\frac{2\pi e^2 Z'}{h} \sqrt{\frac{2m}{E}} + \frac{8}{h} \sqrt{e^2 Z' m} = A + \frac{B}{\sqrt{E}} \quad (\text{A-17})$$

Les paramètres A et B dépendent du numéro atomique Z' .

La probabilité de désintégration λ du noyau père est donc le produit du nombre de collisions par seconde et la probabilité qu'une collision permette à la particule de traverser la barrière. Cette dernière est simplement la transparence T de la barrière de potentiel, soit :

$$\lambda = \frac{v}{2R} e^{-G} \quad (\text{A-18})$$

En prenant le logarithme décimal membre à membre, on arrive à la relation suivante de la période radioactive T :

$$\log T = \frac{\alpha Z}{\sqrt{E}} + \beta \quad (\text{A-19})$$

α et β étant des constantes.

Il y a donc un accord entre ce modèle et les résultats expérimentaux de Geiger et Nutall qui ont observé une relation linéaire entre l'inverse de la racine carré de l'énergie de désintégration et le logarithme de la période radioactive. Un léger désaccord existe pour le cas du ${}^{210}_{84}\text{Po}$ probablement à cause de la couche N=126 de cet isotope qui est plus stable que ce qui est prévu par le modèle de la goutte liquide.

Annexe 2 : Vue en images des produits utilisés pour l'extraction chimique des radionucléides

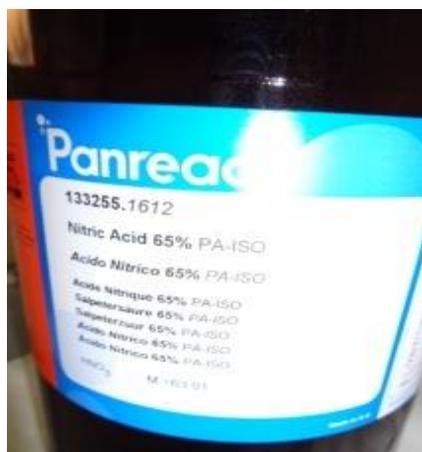


Figure 49 : Flacon d'acide nitrique pur à 65%

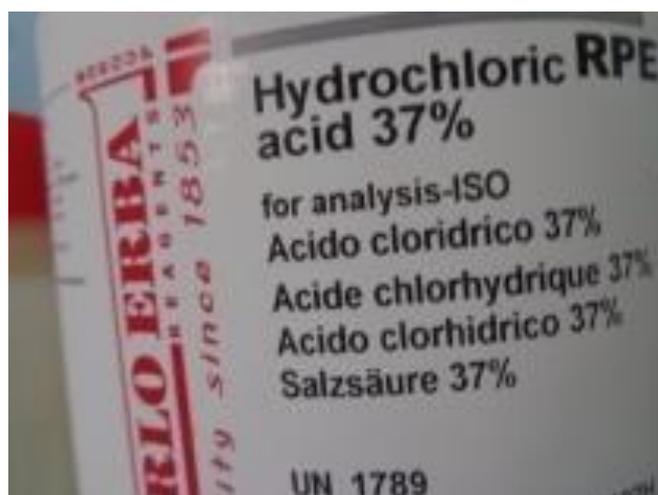
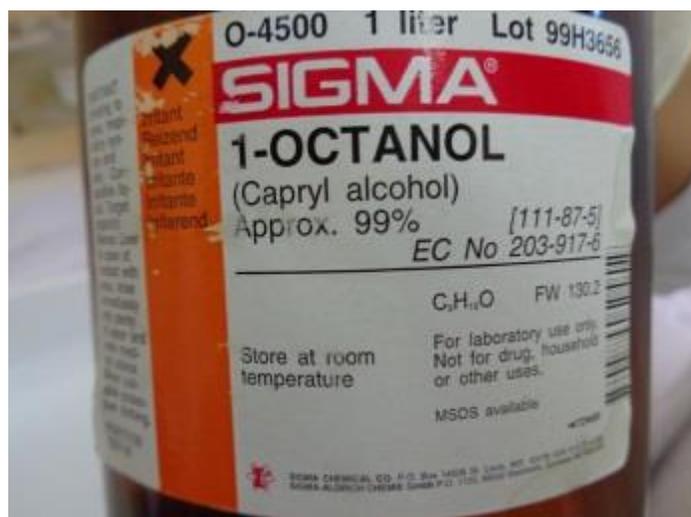
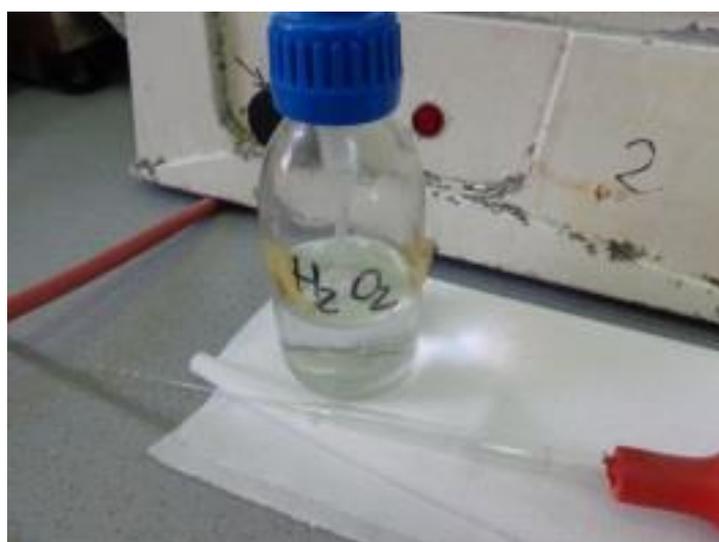


Figure 50 : Flacon d'acide chlorhydrique pur à 37%



***Figure 51** : flacon d'octanol*



***Figure 52** : Flacon contenant de l'eau oxygénée*

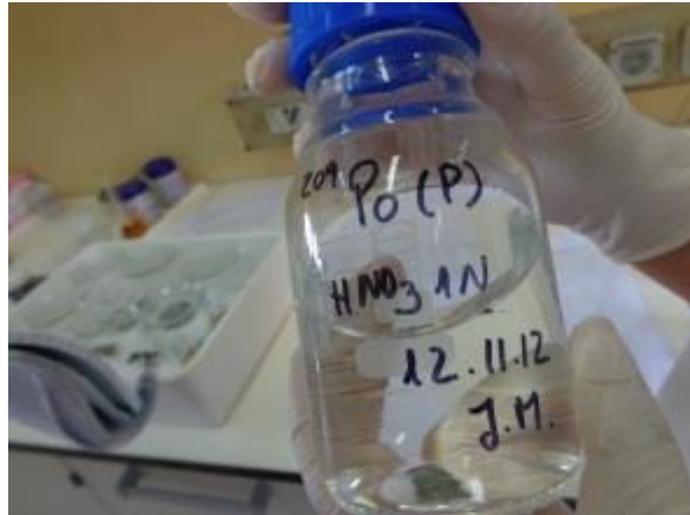


Figure 53 : Solution de ^{209}Po

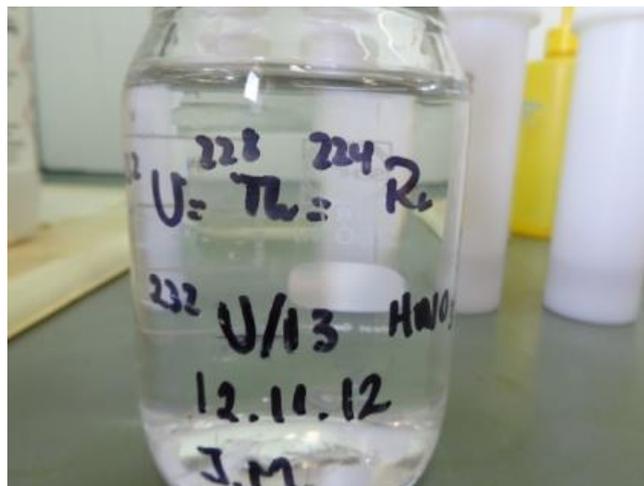
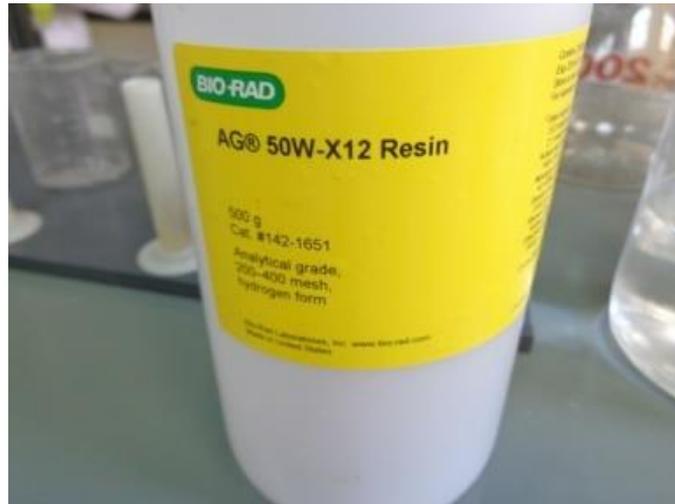


Figure 54 : Solution de ^{232}U , ^{228}Th et ^{224}Ra



***Figure 55** : Résine AG 50W-X12*



***Figure 56** : Flacon d'une solution de chlorure de magnésium*



Figure 57 : Acide oxalique

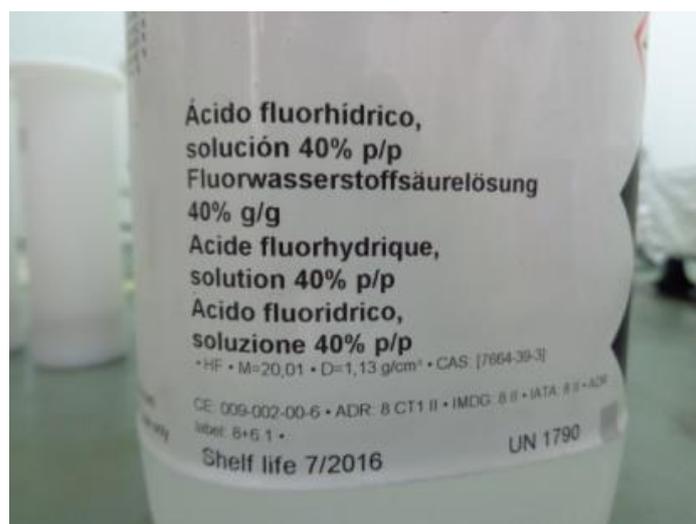
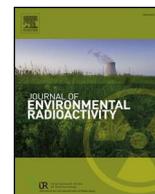


Figure 58 : Acide fluorique

Annexe 2 : Publications scientifiques émanant du travail fait



Study of soil-fern transfer of naturally occurring alpha emitting radionuclides in the Southern Region of Cameroon



S. Mvondo^{a,b,*}, G.H. Ben-Bolie^a, J.M. Ema'a Ema'a^{a,d}, P. Owono Ateba^a, P. Ele abiana^{a,c}, J.F. Beyala Ateba^{a,b,c}

^a Nuclear Physics Laboratory, Faculty of Science, University of Yaounde I, Cameroon

^b National Radiation Protection Agency, P.O. Box 33732 Yaounde, Cameroon

^c Institute of Geological and Mining Research, P.O. Box 4110 Yaoundé, Cameroon

^d University of Maroua, Cameroon

ARTICLE INFO

Keywords:

Activity concentration

Radionuclide

Natural radioactive decay chains

²³⁸U

²³²Th

Alpha spectrometry

Sol-plant transfer factor

ABSTRACT

This study was carried out in the localities Melondo and Ngombas located in the Southern Region of Cameroon where there are known to be uranium-bearing and high background radiation areas. Activity concentrations of naturally occurring radionuclides ²¹⁰Po, ²³⁸U, ²³⁵U, ²³⁴U, ²³²Th, ²³⁰Th, ²²⁸Th and ²²⁶Ra were determined in soil and fern (filicophyta) samples collected at 10 points in both localities. In soil, the average values of these activity concentrations (in $Bq.kg^{-1}$ d.w.) were ²¹⁰Po(130 ± 10), ²³⁸U(126 ± 11.6), ²³⁵U(5 ± 1), ²³⁴U(131 ± 10), ²³²Th(400 ± 22), ²³⁰Th(145 ± 11), ²²⁸Th(381 ± 21) and ²²⁶Ra(154 ± 28) at Melondo; and ²¹⁰Po(228 ± 1), ²³⁸U(170 ± 11), ²³⁵U(9 ± 2), ²³⁴U(179 ± 12), ²³²Th(200 ± 18), ²³⁰Th(184 ± 18), ²²⁸Th(228 ± 22) and ²²⁶Ra(416 ± 7) at Ngomba. In fern the average activity concentrations were: ²¹⁰Po(35 ± 3), ²³⁸U(0.68 ± 0.05), ²³⁵U(0.042 ± 0.01), ²³⁴U(0.90 ± 0.05), ²³²Th(1.2 ± 0.2), ²³⁰Th(0.7 ± 0.1), ²²⁸Th(39 ± 3) and ²²⁶Ra(14 ± 3) at Melondo and ²¹⁰Po(24 ± 2), ²³⁸U(0.82 ± 0.06), ²³⁵U(0.046 ± 0.01), ²³⁴U(0.92 ± 0.06), ²³²Th(0.8 ± 0.2), ²³⁰Th(0.9 ± 0.2), ²²⁸Th(15 ± 5) and ²²⁶Ra(14 ± 3) at Ngomba. The soil-fern transfer factors (TF) (in $kg.kg^{-1}$) were respectively ²¹⁰Po(1.64×10^{-1}), ²³⁸U(5×10^{-3}), ²³⁵U(7×10^{-3}), ²³⁴U(6×10^{-3}), ²³²Th(3×10^{-3}), ²³⁰Th(5×10^{-3}), ²²⁸Th(7.9×10^{-2}), and ²²⁶Ra(5.1×10^{-2}). The highest TF for fern was for ²¹⁰Po, probably because of atmospheric deposition. The TFs of uranium and thorium were comparable to those given in the IAEA handbook for grass.

1. Introduction

There is a great interest in the study of natural environmental radiation as well as radioactivity in soil and plants because the population is exposed to natural radioactivity at different levels depending on the natural radioactive minerals in each region in the world (Akhtar et al., 2005). In fact, higher concentrations of radioactivity in environmental media are associated with higher radiation damage and risk to human such as kidney damage, mutagenicity, bladder and kidney cancer, leukemia, testis cancer, lung cancer, etc. (Guogang et al., 2009; Meinrath et al., 2003; Veronique et al., 2005). Apart from ⁴⁰K, natural radioactivity arises mainly from ²³⁸U and ²³²Th and their daughter products which form the main two natural radioactive decay chains. Radioisotopes from these natural decay chains are present in ground formations with concentrations varying within a wide range of different geological setting (Patra et al., 2013).

Plant contamination by these radioisotopes can result from

deposition of radionuclide from the atmosphere to the above-ground parts and from sorption of radionuclide from the soil by the root system. Root absorption of uranium is dependent on the same parameters that determine its mobility in soils, such as the content of organic matter and the presence of phosphates, sulphates and carbonates (Cuney et al., 1992; Gueniot and Munier-Lamy, 1988). Generally, the transfer soil-plant of radionuclides is assessed in terms of transfer factor (TF) which is defined as the ratio of radionuclide concentration in dry plant to that in dry soil per unit mass (IAEA, 1994). The highest values of uranium TF are often measured in root vegetables, particularly in potato tubers (Sheppard and Sheppard, 1985). Thorium is adsorbed very well by the roots but is very little translocated in the leaves. The ability of the plant to accumulate thorium is correlated with its growth characteristics. Thus, high-growth plants dilute thorium in their dry matter (AEC, 1988). An important pathway for plant contamination may be the resuspension of soil particles. Thus, washing of the vegetation before measurement can decrease by a factor of 10 the TF (Zararsiz et al.,

* Corresponding author. Nuclear Physics Laboratory, Faculty of Science, University of Yaounde I, P.O. Box 33732, Yaounde, Cameroon. Tel.: +237 677806403. E-mail address: mvondostan@yahoo.com (S. Mvondo).

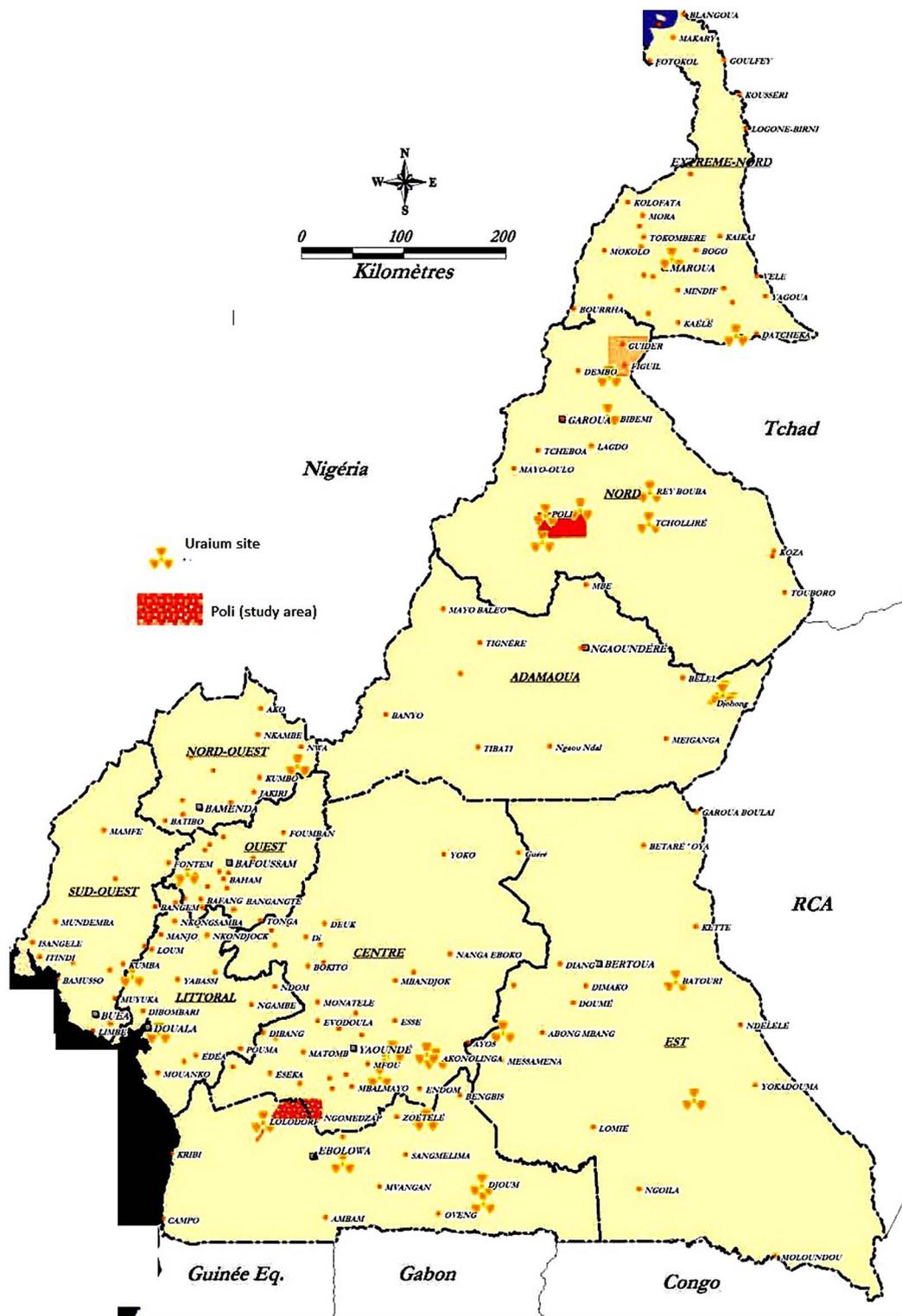


Fig. 1. Uranium projects map of Cameroun showing the sampling area (Nguepjou, 2010).

1997).

Particular attention must be paid to natural ^{210}Po ($T_{1/2} = 138\text{d}$) which is ^{238}U radioactive daughter in radiation protection because of its high degree of toxicity estimated to be 500 to 2000 times higher than that of plutonium for the same activity concentration in soil (Pradel et al., 2001). ^{210}Po is considered to be one of the most important environmental radionuclides due to its wide distribution and potential for human radiation exposure through ingestion and inhalation (Martin and Ryan, 2004).

The present study is carried out in two rural localities (Ngombas and Melondo) in the Lolodorf subdivision in the Southern Region of Cameroon. These areas are located on the Lolodorf syenitic axis extending about 75 km in the South West of Cameroon, from the Precambrian geological period. Radiometric anomalies are concentrated along the Lokoundje River Basin which dissects through radioactive syenite sources (Ele et al., 2010; Maurizot et al., 1986). Fig. 1 shows the uranium exploration projects and identifies the studied area. Since 2009 several investigations have been made around these

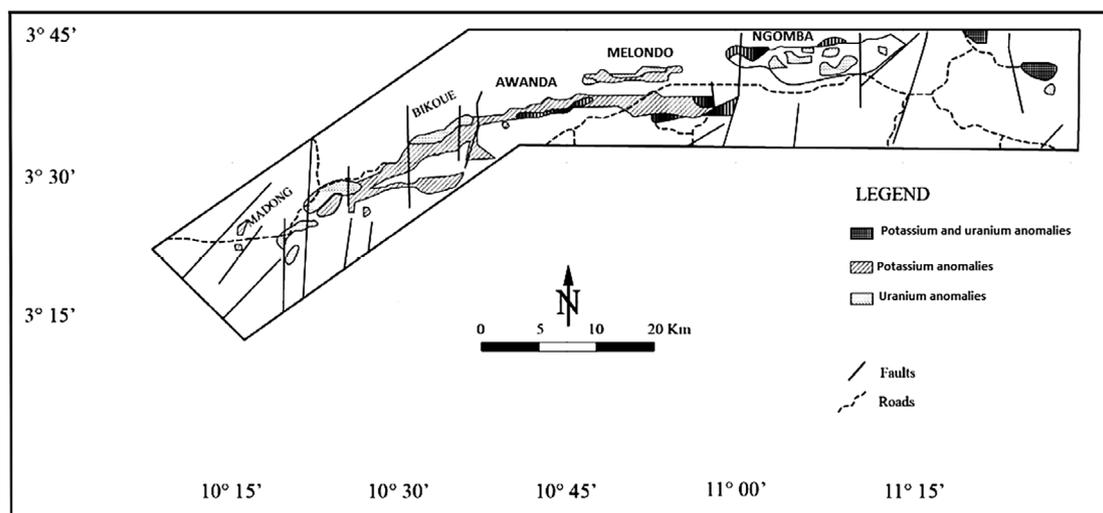


Fig. 2. Geological and radiometric anomalies of Lolodorf locality (Ele et al., 2010; Maurizot et al., 1986).

localities (Beyala et al., 2010, 2011, Ele et al., 2010; Sadou et al., 2011). These studies focused on ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K and revealed that the areas are High Background Radiation Areas (HBRA) (Ele et al., 2010). Fig. 2 shows the radiometric and geological map of both localities. The TFs of some radionuclides have been characterized in these areas for some food stuff plants (Ben-Bolie et al., 2013).

The aim of this work was to use sequential extraction methods for the determination of uranium, thorium, radium and polonium radioisotopes in surface soil and in fern samples collected at ten points within the study area and to characterize the transfer soil-fern TFs.

2. Materials and methods

2.1. Sampling collection and preparation

Soil samples (0 – 10 cm depth) were collected from an area of 0.5m radius at the point of collection. Samples were collected at 10 points over an area of approximately 1 ha for both localities. These soils were dried in an oven at a temperature between 80 and 100 °C for approximately one night, and then homogenized and sieved to 125 μm prior chemical analysis by chromatographic separation. Fern samples (Filicophyta), the main species that grows in the studied areas, were collected near each point of soil collection. These plants were washed, frozen and lyophilized for a week in a lyophilizer at -40 °C. After lyophilization, the dried samples were ground into powder and homogenized.

2.2. Polonium analysis

For plant samples, 100 mg dry weight of each powder sample was spiked in a beaker and 0.5 mL solution of ^{209}Po as yield tracer is added. Each sample was digested for overnight using a mixture of 100 mL of 65% nitric acid and 50 mL of 37% hydrochloric acid (aqua regia) and adding 0.2 mL of octanol to facilitate the digestion of organic material. After digestion, the mixture was gradually evaporated on a hot plate at 200 °C, occasionally adding concentrated nitric acid and a few drops of hydrogen peroxide (H_2O_2) to help oxidizing the organic compounds. After complete evaporation, the residue was dissolved and diluted with concentrated hydrochloric acid and evaporated again to completely remove nitric acid. The residue is then dissolved in concentrated hydrochloric acid with 50 mL of distilled water mixed with 10 mL of ascorbic acid for iron reduction prior to overnight deposition of ^{210}Po on a silver disc under magnetic stirring.

For soil samples, about 5 g of dry soil powder was weighted, isotopic tracers: 0.1 mL of a solution which consist of a mixture of ^{232}U , ^{228}Th

and ^{224}Ra , 1 mL of a solution of ^{229}Th and 0.5 mL of a solution of ^{209}Po were pipetted onto the sample in a Teflon beaker and the sample covered with concentrated HNO_3 and HCl . Wet ashing was performed with gentle heating on a hotplate. Small amounts of HF are added to dissolve the silica fraction. Occasionally, drops of H_2O_2 are added to oxidize organic matter and to ensure conversion of oxidation state of tracers and radionuclides of the sample. After complete dissolution of the sample material, the solution is evaporated to dryness and the residue further treated with concentrated HCl to remove all traces of nitric acid.

2.3. Chromatographic separation of U, Th and Ra isotopes (Olivera and Fernando, 2006)

We combine the use of pre-packed ion exchange resins UTEVA (EichromR) and columns packed in the laboratory with Bio-Rad resin which is the cation exchange AG 50W-12, 200–400 mesh. The sample residue was dissolved in a small volume of 3 M HNO_3 - 1 $\text{M Al}(\text{NO}_3)_3$, 10 mL or 15 mL as needed. 2 mL or 3 mL of ferrous sulphamate is added and mixed. After adding 200 mg of ascorbic acid and mixing, this solution was transferred to a UTEVA column (column I) preconditioned with 3 M HNO_3 (Fig. 3). The sample volume plus washes until a total of 20 mL are collected in a first eluate fraction. This fraction contains Ra and Pb still mixed with other elements such as Fe, Mn, Pu and Am and it is saved to be purified in column II. Further work on column I includes the elution with 5 mL of 9M HCl to convert column to chloride system (discard) and elution with 20 mL of the mixture 5M HCl -0.05M oxalic acid. The eluate of this fraction contains thorium sufficiently purified to be electroplated. Further elution of column I with 15 mL of 0.01M HCl , removes uranium from the resin bed, ready for the electrodeposition step.

2.4. Electrodeposition

Electrodeposition of uranium and thorium was performed on the polished surface of stainless steel discs, in Teflon cells with a platinum wire as anode. The fraction containing uranium or thorium for electrodeposition were evaporated to dryness and the residue treated with a few drops of HNO_3 to convert salts. The dry residue was dissolved with 10 mL of ammonium solution (100 g.l^{-1} of $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$) at pH = 2 adjusted with H_2SO_4 and transferred to the electrode position cell then rinsed with ammonium solution. The electrodeposition was for 1 h with the electric current of 1A.

The radium fraction for electrodeposition was gently evaporated to dryness. The residue was dissolved with 0.35M ammonium acetate and 0.1M HNO_3 and the solution transferred with washes to the deposition

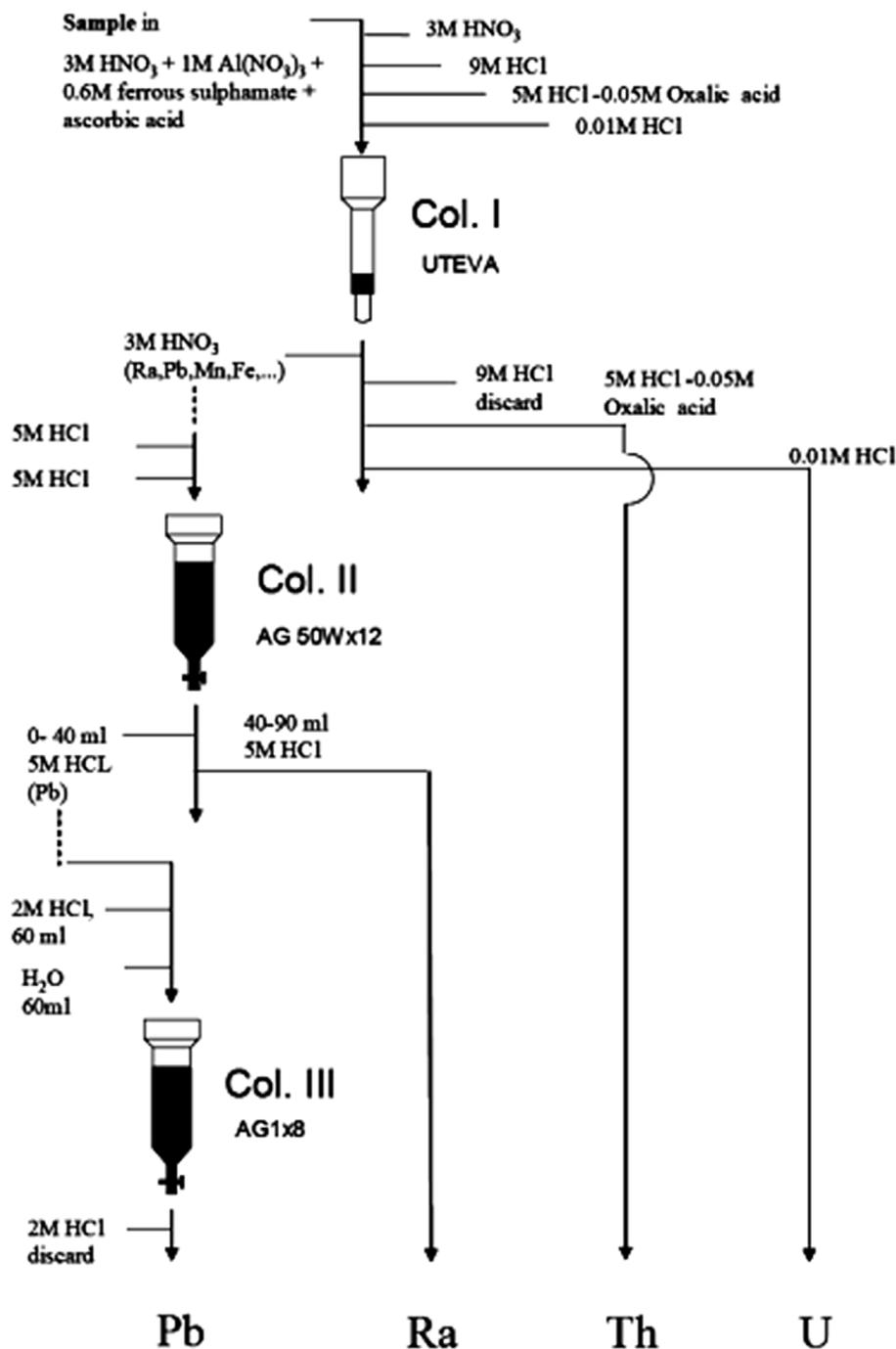


Fig. 3. Diagram showing the chromatographic separation of U, Th and Ra.

cell. Electrodeposition on a stainless steel disc was performed during 3 h with an electric current of 600 mA.

2.5. Alpha counting

Measurements were done using CANBERRA alpha spectrometer with ion-implanted silicon detectors. The acquisition of the spectrum in the computer was made using MAESTRO software. The detector efficiency was previously measured using a reference source consisting of a mixture of ²³⁷Np ($T_{1/2} = 2.14 \times 10^6$ years), ²⁴¹Am ($T_{1/2} = 433.176$ years) and ²⁴⁴Cm ($T_{1/2} = 18.1$ years), whose activities are known at the measurement date.

3. Results and discussion

3.1. Activity concentrations of natural radionuclides in soil

The mean values of chemical yield of Po, Ra, U and Th were respectively: 0.65, 0.028, 0.776 and 0.256 in fern and 0.77, 0.037, 0.744 and 0.483 in soil. Fig. 4 shows the activity concentrations (in Bq.kg⁻¹ d.w.) of the naturally occurring ²¹⁰Po, ²³⁸U, ²³⁵U, ²³⁴U, ²³²Th, ²³⁰Th, ²²⁸Th and ²²⁶Ra in the soil samples. At Melondo, the most concentrated radionuclide in soil is ²³²Th with an activity of (400 ± 22)Bq.kg⁻¹ whereas ²²⁶Ra is the most concentrated at Ngombas with an activity concentration of (416 ± 57)Bq.kg⁻¹. A previous study based on gamma spectrometry made at Ngombas and Bikoe gives the activity concentration of ²³²Th in soil range from 210Bq.kg⁻¹ to 910Bq.kg⁻¹ (Ele et al., 2010; Beyala et al., 2010). This range includes the values of

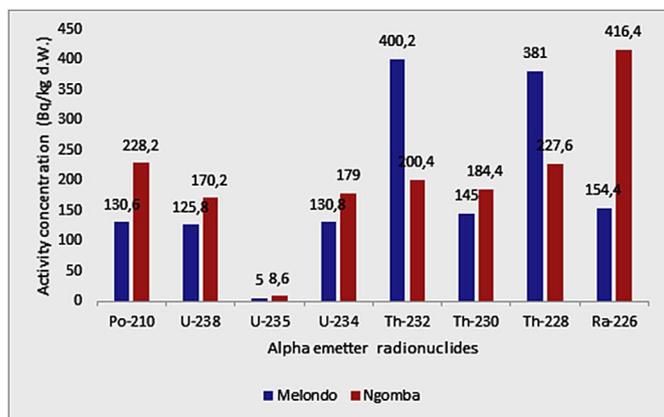


Fig. 4. Concentration of radionuclides in soil for both localities.

the present study and confirms the fact that the study area is a high background radiation area.

A similar study performed in another uranium-bearing area of Cameroon named Poli gives the similar results in terms of activity concentrations (Sadou et al., 2011). The average ratios of $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ and $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ were respectively 0.046 and 1.05. These values are approximately the same as the universal ones which are respectively 0.045 and 1.21 (Bario, 2012; UNSCEAR, 2000). Therefore, uranium in the samples is natural. The worldwide mean activity concentrations of ^{226}Ra (^{238}U) and ^{232}Th in soil are respectively 33 and 45 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ (UNSCEAR, 2000). These values are low compared to those obtained in this study. The worldwide average of activity concentration of ^{210}Po in soil is 40 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ (Pradel et al., 2001). Compared to this, the mean value obtained in this study is higher and is similar to that obtained in Saskatchewan- Canada, around the Key Lake uranium mine with the same surface soil depth (Thomas, 2000). This can confirm the fact that study area is uranium-bearing zone. On the other hand, the median values of ^{226}Ra and ^{232}Th activities concentration in soil for different countries are known to be 35 and 30 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, while the values obtained in this work are 285 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ and 300 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ respectively. That means the values obtained in this study are ten times greater than the worldwide average values.

3.2. Activity concentrations of radionuclides in fern

The activity concentrations in fern (Filicophyta) ranged from 0.04 to 40 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ at Melondo, the maximum corresponding to ^{238}Th , and from 0.04 to 15 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ at Ngombas, the maximum corresponding to ^{210}Po . The global range of activity concentrations of ^{210}Po in plants varies from 0.1 to 160 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ d.w. for most plants (Coppin and Roussel-Debet, 2004); the values obtained in this study are in this range. The contamination of vegetation by the ^{210}Po is largely by deposition to the

leaf (Francis et al., 1968; Pietrzak-Flis and Skowronska-Smolak, 1995; Skwarzec et al., 2001.), which depends on parameters such as growing season rainfall, and size and morphology of leaves, etc. In Ngombas, the ranges of activity concentrations of ^{238}U and ^{232}Th in certain edible plants such as cassava, cocoyams, groundnuts, plantains were respectively 1–250 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ d.w. and 1–700 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ d.w (Ele et al., 2010). The mean activity concentrations of the both radionuclides in fern in the same locality were respectively 0.82 and 0.79. These values are very low compared to the previous ones. This may be due to the fact that, since the fern has very fine roots, the absorption of radionuclides is more per leaf. The washing of the samples could contribute to reduce this concentrations.

3.3. Soil-fern transfer factors of naturally occurring radionuclides

Assuming that TF is lognormally distributed, the geometric means were calculated. The results are presented in Table 1. Apart from ^{210}Po , ^{226}Ra and ^{228}Th , TFs of other radionuclides are almost all approximately 0.005. A similar study performed at Ngomba (Ben-Bolie et al., 2013) found the TF of cassava leaves to be 1.5 for both ^{238}U and ^{232}Th , which is very high comparing to the fern TF measured here. Some ^{238}U TFs proposed by IAEA (IAEA Hand Book, 2000) for plants in tropical environments were 0.048 for leafy vegetables (leaves) and 0.032 for leguminous vegetables. The value obtained in this study for fern, ^{238}U (0.005), is approximately ten time lower than the IAEA reported values. In fact, the fern has very fine roots, therefore, root transfer is very low compared to tuber crops such as cassava, yam, etc. The transfer of radionuclide to fern essentially foliar, and therefore the washing of the samples before analysis greatly reduces the concentration associate with the plant. This is in accordance with the fact that washing of the vegetation before measurement can decrease the TF by a factor of 10 (Zararsiz et al., 1997). The TFs of uranium vary between 10^{-3} and 10^{-2} $\text{kg}\cdot\text{kg}^{-1}$. The highest values are measured in root vegetables, particularly in potato tubers (Sheppard and Sheppard, 1985). The values obtained in this study for fern varied between 5×10^{-3} and 7×10^{-3} , which were in the same range. The TF of thorium is 1.8×10^{-3} for leafy vegetables and 1.1×10^{-2} for grass (IAEA, 1994). The mean value obtained in this study for the three isotopes was 1.2×10^{-2} , so is approximately the same as for grass. The main absorbed isotope is ^{228}Th which TF was 0.10.

4. Conclusion

In this work, the activity concentrations (in $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ d.w.) of the radionuclides ^{210}Po , ^{238}U , ^{235}U , ^{234}U , ^{232}Th , ^{230}Th , ^{228}Th and ^{226}Ra were determined in soils and in fern of both localities of the Lolodorf Subdivision in the Southern Cameroon. In soil, the average values of these activity concentrations ranged from 5 to 416 $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$. These values were higher for thorium series radioisotopes at Melondo, and higher for uranium series radioisotopes in Ngomba. In the fern, the

Table 1
Soil-fern transfer factors (in $\text{kg}\cdot\text{kg}^{-1}$ on a dry weight basis) at each sampling point for each radionuclide.

Sampling point	Po-210	U-238	U-235	U-234	Th-232	Th-230	Th-228	Ra-226
M1	0.53	0.0052	0.0075	0.0051	0.0016	0.0036	0.43	0.57
M2	0.18	0.0071	0.0080	0.0074	0.0049	0.0075	0.20	0.090
M3	0.17	0.0052	0.0082	0.0071	0.0022	0.0037	0.12	0.13
M4	0.17	0.0045	0.0080	0.0073	0.0027	0.0057	0.14	0.059
M5	0.40	0.0048	0.0010	0.0071	0.0031	0.0046	0.057	0.096
NG1	0.11	0.0052	0.0050	0.0052	0.0035	0.0050	0.057	0.027
NG2	0.091	0.0050	0.0056	0.0040	0.0030	0.0059	0.061	0.036
NG3	0.12	0.0061	0.0060	0.0060	0.0040	0.0050	0.068	0.015
NG4	0.11	0.0040	0.0057	0.0053	0.0050	0.0045	0.064	0.044
NG5	0.098	0.0035	0.0044	0.0053	0.0043	0.0050	0.081	0.046
Geometric mean	0.174	0.0052	0.0054	0.0059	0.0031	0.0049	0.102	0.066
Geometric standard deviation	1.8	1.2	1.9	1.2	1.4	1.3	2.0	2.9

mean activity concentrations of these radionuclides ranged 0.04 – 35Bq.kg⁻¹, with the maximum corresponding to ²¹⁰Po and the minimum to ²³⁵U. From the activity concentrations of radionuclide in soil and fern, soil-fern TFs were evaluated. The results ranged between 3 × 10⁻³ and 1.64 × 10⁻¹. The most absorbed radionuclide by fern was found to be ²¹⁰Po. The fern TF values for thorium and uranium are comparable for those given in the IAEA handbook for grass.

Acknowledgments

S. Mvondo thanks IAEA and the General Manager of the Cameroon National Radiation Protection Agency, Dr SIMO for giving the opportunity to make this study. This study would not have been possible without the support of Dr Fernando Carvalho and his collaborators Joo Motta and Margarida Malta, all of the Environmental Radioactivity Laboratory of the Technological and Nuclear Institute of Lisbon-Portugal. It is also the occasion to thank them sincerely.

References

- AEC, 1988. Effect of Soil Type on Radionuclides in Plants. vol. 1988. Atomic Energy of Canada, Dc, pp. 206 Info0290, Research report, 39 p.
- Akhtar, N., Tufail, M., Ashraf, M., 2005. Natural environmental radioactivity and estimation of radiation exposure from saline soils. *Int. J. Environ. Sci. Technol.* 1 (4), 279–285.
- Bario, A., 2012. Determination of uranium isotopes in environmental samples. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 295, 621–631.
- Ben-Bolie, G.H., Ele Abiama, P., Owono Ateba, P., El Khoukhi, T., El Moursli, R.C., 2013. Transfer of ²³⁸U and ²³²Th from soil to plant in a high background radiation area of the 216 southwestern region of Cameroon. *Radiat. Prot. Dosim.* 1–5.
- Beyala, A.J.F., Owono, A.P., Ben-Bolie, G.H., Ekobena, F.H., Ele, A.P., Abega, C.R., Mvondo, S., 2010. Natural Background dose measurements in south Cameroon. *Radiat. Protection Dosimetry* 1–8.
- Beyala, A.J.F., Owono, A.P., Ben-Bolie, G.H., Ekobena, F.H., Ele, A.P., Abega, C.R., Mvondo, S., 2011. Determination of uranium in rock and soil of South Cameroon. *Radioisotope* 10, 60.
- Coppin, F., Roussel-Debet, S., 2004. Comportement du ²¹⁰Po en milieu terrestre : revue bibliographique. *Radioprotection* 39.
- Cuney, M., Leroy, J., et Pagel, M., 1992. L'uranium, Collection " Que Sais-je ?". Presses Universitaires de France.
- Ele, A.P., Owono, A.P., Ekobena, F.H., Ben-Bolie, G.H., El Khoukhi, T., 2010. High background radiation investigated by gamma spectrometry of the soil in the southwestern region of Cameroon. *J. Environ. Radioact.* 101, 739–743.
- Francis, C.W., Chesters, G., Erhardt, W.H., 1968. ²¹⁰Po entry into plants. *Environ. Sci. Technol.* 2 (9), 691–695.
- Gueniot, B., Munier-Lamy, C., 1988. Geochemical behavior of uranium in soils, part I. Influence of pedogenetic processes on the distribution of uranium in aerated soils. *J. Geochem. Explor.* 31, 21–37.
- Guogang, J., Giancarlo, T., Leandro, M., 2009. Concentration of ²³⁸U, ²³⁴U, ²³⁵U, ²³²Th, ²³⁰Th, ²²⁸Th, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra, ²²⁴Ra, ²¹⁰Po, ²¹⁰Pb and ²¹²Pb in drinking water in Italy: reconciling safety standards based on measurements of gross and. *J. Environ. Radioact.* 100, 941–949.
- IAEA, 1994. Handbook of Parameters Values for the Prediction of Radionuclides Transfer in Temperate Environments. Technical report series N°364, Vienne.
- Martin, P., Ryan, B., 2004. Natural-series radionuclides in traditional Aboriginal foods in tropical northern Australia: a review. *Sci. World J.* 4, 77–95.
- Maurizot, P., Abessolo, A., Feybesse, J.L., Johan, V., Lecomte, P., 1986. Etude et prospection minière du Sud-Ouest Cameroun. Synthèse des travaux du BGRM, de 1978 à 1985.
- Meinrath, A., Schneider, P., Meinrath, G., 2003. Uranium ores and depleted uranium in the environment, with reference to uranium in the biosphere from the Erzgebirge/Sachsen, Germany. *J. Environ. Radioact.* 64, 175–193.
- Nguepjouo, D., 2010. Centre de l'environnement et du développement.
- Olivera, J.M., Fernando, P.C., 2006. Sequential extraction procedure for determination of uranium, thorium, radium, lead and polonium radionuclides by alpha spectrometry in environmental samples. *Czechoslov. J. Phys.* 56.
- Patra, A.C., Sahoo, S.K., Tripathi, R.M., Puranik, V.D., 2013. Distribution of radionuclides in surface soils, Singhbhum shear zone, India and associated dose. *Environ. Monit. Assess.* 185, 7833–7843.
- Pietrzak-Flis, Z., Skowronska-Smolak, M., 1995. Transfer of ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po to plants via root system and above-ground interception. *Sci. Tot Environ.* 162, 139–147.
- Pradel, J., Zettwoog, P., Dellerio, N., Beutier, D., 2001. Le polonium-210, un repère naturel important en radioprotection. *Radioprotection* 36, 401–4016.
- Saïdou, Bochud, F.O., Baechler, S., Kwato, N.M., Ngachin, M., Froidevaux, P., 2011. Natural radioactivity measurements and dose calculations to the public: case of the uranium-bearing region of Poli in Cameroon. *Radiat. Meas.* 46, 254–260.
- Sheppard, M.I., Sheppard, S.C., 1985. The plant concentration ratio concept as applied to natural U. *Health Phys.* 48 (4), 494–500.
- Skwarzec, B., Struminska, D.I., Ulatowski, J., Golebiowski, M., 2001. Determination and distribution of Po-210 in tobacco plants from Poland. *J. Radioanal. Nuc. Chem.* 250 (2), 319–322.
- Thomas, P.A., 2000. Radionuclides in the terrestrial ecosystem near a Canadian uranium mine- Part I: distribution and doses. *Health Phys.* 18 (6), 614–624.
- UNSCEAR, 2000. Exposures from Natural Radiation Sources.
- Veronique, Malard, Odette, Prat, Elisabeth, Darrouzet, Frederic, Berenguer, Nicole, Sage, Eric, Quemeneur, 2005. Proteomic analysis of the response of human lung cells to uranium. *Proteomics* 5, 4568–4580.
- Zararsiz, A., Kirmaz, R., et Arikian, P., 1997. Field study on thorium uptake by plants within and around of a thorium ore deposit. *J. Radioanal. Chem.* 222 (1–2), 257–262.

Dose estimates to the public due to ^{210}Po ingestion via cocoa powder from Lolodorf high background radiation area, Cameroon

S. Mvondo^{1,2}, J.F. Beyala Ateba^{1,2,*}, G.H. Ben-Bolie¹, P. Owono Ateba¹, A. Simo² and H.F. Ekobena¹

¹ Nuclear Physics Laboratory, Faculty of Science, University of Yaoundé I, P.O. Box 812, Yaoundé, Cameroon.

² National Radiation Protection Agency, P.O. Box33732, Yaoundé, Cameroon.

Received: 12 March 2018 / Accepted: 9 May 2018

Abstract – ^{210}Po activity concentrations have been measured in Lolodorf high background radiation area in cocoa beans which are hand-processed into cocoa powder for breakfast purposes to estimate radiological dose to human. ^{210}Po has been also measured in cocoa leaves and compared to the cocoa beans ^{210}Po content. The analysis has been carried out by CANBERRA alpha spectrometry using ion-implanted silicon detectors. ^{210}Po activity concentrations in cocoa beans varied from 2.31 ± 0.23 to $8.09 \pm 0.56 \text{ Bq.kg}^{-1}$, while these values varied from 21.7 ± 0.87 to $66.67 \pm 1.58 \text{ Bq.kg}^{-1}$ in cocoa leaves. The corresponding mean values are 4.96 ± 1.86 and $42.54 \pm 16 \text{ Bq.kg}^{-1}$ on a dry weight basis respectively. The obtained values confirm the fact that ^{210}Po activity concentrations in cocoa leaves are high compared to the cocoa beans due to the deposition of ^{222}Rn daughters in the atmosphere. The mean radiological doses to human were founded to be 0.227, 0.134, 0.083 and 0.062 mSv/year for children 2- to 7-year-olds, 7- to 12-year-olds, 12- to 17-year-olds and for adult respectively. Ingestion of cocoa powder by the most exposed group ages (children) might not exceed the recommended dose limit for members of the public, which is 1 mSv/year.

Keywords: ^{210}Po / activity concentrations / radiological dose / cocoa beans / cocoa powder

1 Introduction

There are seven polonium isotopes naturally present in the environment: ^{210}Po , ^{214}Po and ^{218}Po of the ^{238}U decay series; ^{212}Po and ^{216}Po of the thorium decay series; and ^{211}Po and ^{215}Po of the ^{235}U decay series. ^{210}Po has a half-life of approximately 138 days, which is long enough to play a significant role in many environmental processes. All of the other naturally occurring isotopes have half-lives of only 3 minutes or less.

^{210}Po is an alpha emitting radionuclide with no radioactive progeny and produces only very-low-intensity gamma rays at very low abundance; thus, the dose largely arises from internal exposure. The main reasons for its radiological importance are its relatively high activity concentrations in certain foods and its relatively high ingestion dose coefficient. Radiation doses from ^{210}Po arise owing to natural occurrences of the radionuclide as well as to human activities (IAEA, 2017). As ^{210}Po is part of the ^{238}U decay series, it is naturally occurring and is found in varying amounts worldwide. The analysis of the radionuclide contents of foods and water, along with bioassay data and knowledge of the metabolic behaviour of the radionuclides, provides an alternative basis for dose estimation (UNSCEAR, 2000). ^{210}Po contributes a substantial portion

of the radiation dose to human. According to Bulman et al., the dose due to ingestion of ^{210}Po was about 7% of the natural internal radiation dose (Bulman et al., 1995). The main source of ^{210}Po in the environment is ^{222}Rn gas which diffuses into the atmosphere from rocks and soil where it ultimately decays to ^{210}Pb , ^{210}Bi and then to ^{210}Po in the atmosphere. ^{210}Po attaches itself further electrostatically to aerosol particles and are transported back to earth's surface to soil, plant and aquatic environments by dry deposition and wash out (Santos et al., 1990; Pietrzak-Flis and Skowronska-Smolak, 1995; Karali et al., 1996). Consumption of food is usually the most important route by which natural radionuclides can enter the human body and assessment of their levels in different foods is therefore important to estimate the intake of these radionuclides by man.

Ngombas and Melondo, which are two localities of Lolodorf subdivision of the south region of Cameroon, were considered as study areas. According to Chapaud in its work performed in 1966 on Cameroon's cocoa economy, it has been established that south region of Cameroon is the main cocoa production area (Champaud, 1966). Since cocoa is a fragile tree, it supports neither too low temperatures nor too strong, intensive zone for cocoa activities in Cameroon is a relatively narrow band of 50 to 70 km wide which widens in the south in the departments of Ntem and Dja-et-Lobo, and towards Lolodorf. The optimum temperature seems to be around 27 °C;

*Corresponding author: bajejanfelix@yahoo.fr

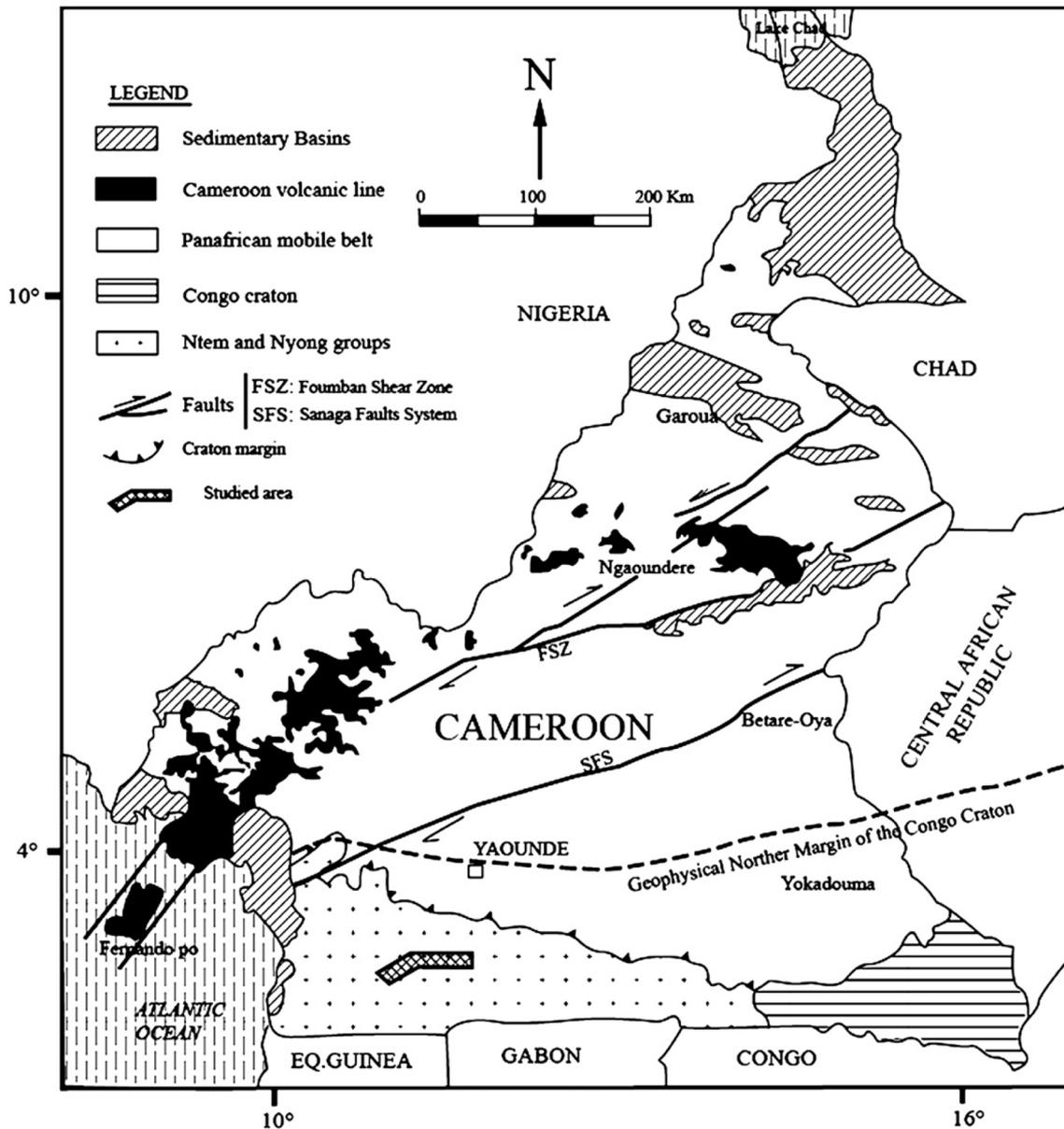


Figure 1. Geological map of Cameroon.

it cannot tolerate temperatures higher than 32°C , nor those lower than 15°C (Champaud, 1966). The entire population lives from cocoa production which is hand-processed into cocoa powder for local consumption and on the other hand involved in world trade for the manufacture of the chocolate. Between 1978 and 1985, this subdivision has been identified as uranium ores deposits by French Office of Geological and Mining Research (Maurizot *et al.*, 1986). For this previous investigation which consisted of helicopter-borne radiometric survey was to evaluate the mineral potential of the region. Recently, gamma spectrometry has been performed to determine natural radioactivity in soil and rocks samples from this area (Ele Abiama *et al.*, 2010; Beyala Ateba *et al.*, 2010, 2011, 2017; Ben-Bolie *et al.*, 2013; Saïdou Shinji *et al.*, 2015). These studies identified Lolodorf as High Background Radiation Area (HBRA). According to Beyala Ateba *et al.*, study made at Ngombas and Bikoe gives the mean activity

concentrations of $1482 \pm 280 \text{ Bq.kg}^{-1}$ for ^{40}K , $134 \pm 64 \text{ Bq.kg}^{-1}$ for ^{226}Ra and $177 \pm 102 \text{ Bq.kg}^{-1}$ for ^{232}Th in soil and the average outdoor absorbed dose rates in air, 1 m above the ground surfaces, were estimated to be 218 ± 61 and $250 \pm 97 \text{ nGy.h}^{-1}$ in the locations of Ngombas and Bikoue, respectively (Beyala Ateba *et al.*, 2010).

Mvondo *et al.* (2017) studied the soil-fern transfer of naturally occurring alpha emitting radionuclides in the southern region of Cameroon. This study concluded the fact that the study area is a high background radiation area. Figures 1 and 2 show the study area position in Cameroon map and radiometric map of both localities.

Since ^{210}Po is considered to be one of the most important environmental radionuclide due to its wide distribution and potential for human radiation exposure through ingestion and inhalation (Martin and Ryan, 2004), the main objective of the study is to measure ^{210}Po activity concentrations in cocoa

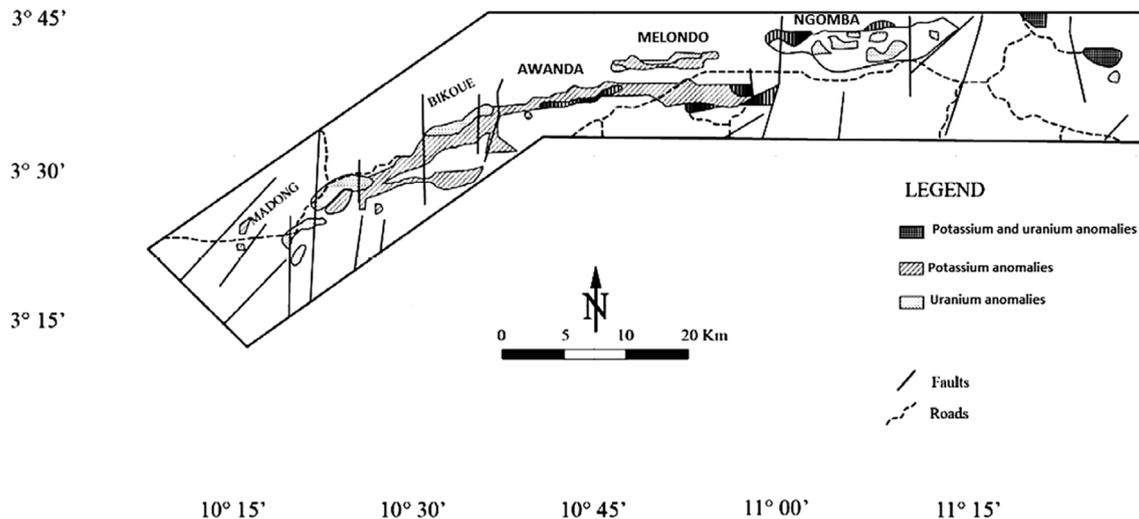


Figure 2. Geological and radiometric anomalies of Lolodorf locality.

beans and leaves and estimate radiological dose to human due to the consumption of the cocoa powder in the study area.

2 Materials and methods

2.1 Sampling collection and preparation

Samples have been collected by 10 points over an area of approximately 1 hectare for both localities. The present study was conducted on adult cocoa trees with an average height of 2 m. Most branches are close to the ground to collect the leaves without climbing. For a given tree, about a number of 10 wet leaves and 02 fruits were collected per leaves and beans sample respectively. Mature fruits were cut from the stems and split with a machete to extract the beans.

Cocoa beans and leaves sample were collected, washed, frozen and lyophilized for a week in a lyophilizer at -40°C . After lyophilization, the dried samples were ground into powder and homogenized.

2.2 Polonium analysis

The preparation procedure has been followed according to Mvondo *et al.* One hundred milligrams of dry weight of each powder sample was spiked in a beaker and 0.5 mL solution of ^{209}Po as yield tracer is added (Mvondo *et al.*, 2017). Each sample was digested for overnight using a mixture of 100 mL of 65% nitric acid and 50 mL of 37% hydrochloric acid (aqua regia) and adding 0.2 mL of octanol to facilitate the digestion of organic material. After digestion, the mixture is gradually evaporated on a hot plate at 200°C , occasionally adding concentrated nitric acid and a few drops of hydrogen peroxide (H_2O_2) to help oxidizing the organic compounds. After complete evaporation, the residue was dissolved and diluted with concentrated hydrochloric acid and evaporated again to completely remove nitric acid. The residue is dissolved in concentrated hydrochloric acid with 50 mL of distilled water mixed with 10 mL of ascorbic acid for iron reduction prior to overnight deposition of ^{210}Po on a silver disc under magnetic

stirring. Polonium is deposited onto silver foil 99.9% pure, cut in the laboratory with an extruder in 24 mm diameter discs. Discs are used once and discarded.

2.3 Alpha counting

Measurements were done using CANBERRA alpha spectrometer with ion-implanted silicon detectors. The acquisition of the spectrum in the computer was made using MAESTRO software. The detector efficiency was previously performed using a reference source which consists of a mixture of ^{237}Np ($T_{1/2} = 2.14 \times 10^6$ years), ^{241}Am ($T_{1/2} = 433.176$ years) and ^{244}Cm ($T_{1/2} = 18.1$ years) whose activities are known at the measurement date.

3 Results and discussion

3.1 Activity concentrations of ^{210}Po in cocoa beans and leaves

Analytical results were obtained with the efficiency detectors range between 20 and 30% and with chemical yield of 80% approximately. Table 1 presents activity concentrations of ^{210}Po in cocoa beans and leaves. ^{210}Po activity concentrations in cocoa beans varied from 2.31 ± 0.23 to $8.09 \pm 0.56 \text{ Bq.kg}^{-1}$, while these values varied from 21.7 ± 0.87 to $66.67 \pm 1.58 \text{ Bq.kg}^{-1}$ in cocoa leaves on a dry weight basis. The corresponding mean values are 4.96 ± 1.86 and $42.54 \pm 16.21 \text{ Bq.kg}^{-1}$ respectively. The obtained values confirm the fact that ^{210}Po activity concentrations in cocoa leaves were higher than in the cocoa beans due to the deposition of ^{222}Rn daughters in the atmosphere. The contamination of vegetation by the ^{210}Po is largely by deposition on the leaf, which depends on parameters such as growing season rainfall, and size and morphology of leaves (Francis *et al.*, 1968; Skwarzec *et al.*, 2001).

It also appears in Table 1 that ^{210}Po activity concentrations in the cocoa samples in Ngombas are relatively high compared to those measured in Melondo due to the fact that soil activity concentrations in Ngombas are high. The previous studies

Table 1. ^{210}Po activity concentrations in cocoa beans and cocoa leaves.

Sampling Locality	Location ID	^{210}Po activity concentration in the samples (Bq/kg dry weight)	
		Cocoa beans	Cocoa leaves
Melondo	M1	2.31 ± 0.23	21.74 ± 0.87
	M2	4.63 ± 0.42	31.79 ± 1.12
	M3	4.22 ± 0.4	41.54 ± 1.37
	M4	3.42 ± 0.36	23.74 ± 0.77
	M5	3.87 ± 0.33	33.92 ± 0.97
Ngombas	N1	4.88 ± 0.39	66.67 ± 1.58
	N2	8.09 ± 0.56	66.53 ± 1.56
	N3	6.41 ± 0.47	57.48 ± 1.46
	N4	4.12 ± 0.38	40.07 ± 1.02
	N5	7.69 ± 0.47	41.89 ± 1.22
Maximum	–	8.09 ± 0.56	66.67 ± 1.58
Minimum	–	2.31 ± 0.23	21.74 ± 0.87
Mean	–	4.96	42.54
Standard deviation	–	1.86	16.21

Table 2. ^{210}Po soil-cocoa beans and ^{210}Po soil-cocoa leaves transfer factors (in kg/kg on a dry weight basis) at each sampling point.

Sampling locality	Location ID	^{210}Po activity concentration in Soil	Soil-cocoa beans	Soil-cocoa leaves
			transfer factor	transfer factor
Melondo	M1	81 ± 7	0.0285	0.2684
	M2	152 ± 11	0.0305	0.2091
	M3	176 ± 15	0.0240	0.2360
	M4	112 ± 9	0.0305	0.2120
	M5	132 ± 8	0.0293	0.2570
Ngombas	N1	246 ± 24	0.0198	0.2710
	N2	231 ± 18	0.0350	0.2880
	N3	251 ± 23	0.0255	0.2290
	N4	189 ± 12	0.0218	0.2120
	N5	224 ± 16	0.0343	0.1870
Maximum	–	251 ± 23	0.0350	0.2880
Minimum	–	81 ± 7	0.0198	0.1870
Mean	–	179.4	0.0279	0.2370
Standard deviation	–	59.2	0.0051	0.0329

based on gamma ray spectrometry established high ^{238}U and ^{226}Ra in soil samples of Ngombas subdivision (Beyala Ateba *et al.*, 2010, 2011; Ele Abiama *et al.*, 2010). According to Coppin and Roussel-Debet (2004), the global range of activity concentrations of ^{210}Po in plants varied from 0.1 to 160 Bq/kg (Coppin and Roussel-Debet, 2004). The values obtained for cocoa beans and leaves in this study are in this range. In addition, the relative importance of exposure pathways depends on the concentration of the radionuclides in the soil, the soil-plant transfer factors (TF) and the rate of deposition onto plant parts above ground.

According to the study of Mvondo *et al.* (2017) on soil-fern transfer of naturally occurring alpha emitting radionuclides in the southern region on Cameroon, where activity concentrations in soil of different alpha emitting radionuclides are known, soil-cocoa transfer factors of ^{210}Po have been determined. Table 2 presents soil-cocoa beans and soil-cocoa leaves transfer factors. Soil-cocoa beans transfer factors varied from 0.0198 to 0.0350, while soil-cocoa leaves transfer factors varied from 0.187 to 0.2880. The corresponding mean values are 0.0279 and 0.237 respectively. Soil-cocoa leaves transfer factors are 10 times high compared to soil-cocoa beans transfer factors. Transfer factors (TFs) range across orders of magnitude, depending on the plant and soil type variations assessed (IAEA, 2010). It should be noted that the radioactivity in the plant is not only acquired through root transfer. The above ground biomass might also be contaminated because of resuspension or direct deposition of radionuclides from the atmosphere (Pietrzak-Flis and Skowronska-Smolak, 1995).

3.2 Estimation of radiological dose to human

Based on the collaboration of several families regularly consuming cocoa powder in their breakfast, a consumption rate of 1 kg/week of cocoa powder for a family of about 5 persons has been assumed. The ingestion doses were estimated using

the activity concentration of ^{210}Po determined in cocoa beans and the appropriate dose conversion factor recommended by ICRP (ICRP, 1996). Table 3 shows radiological dose to human due to the consumption of cocoa powder in Lolodorf HBRA. The mean radiological doses to human were founded to be 0.227, 0.134, 0.083 and 0.062 mSv/year for children 2- to 7-year-olds, 7- to 12-year-olds, 12- to 17-year-olds and for adult respectively. Ingestion of cocoa powder by the most exposed group ages (children) might not exceed the recommended dose limit for members of the public, which is 1 mSv/year. The values from the present study were relatively high compared to those obtained from study performed in Qena city, Egypt by Salahel Din in 2011 which revealed that the annual dose received by the general public via ingestion of ^{210}Po varied from 0.008 to 38.3 $\mu\text{Sv}/\text{year}$ (Salahel, 2011). Similar study focused on dose estimates to the public from ^{210}Po ingestion via dietary sources at Kalpakkam, India reported values from 0.08 to 128 $\mu\text{Sv}/\text{year}$ (Kannan *et al.*, 2001). These results are in the same range with those obtained in the present study. In 2014, Carvalho *et al.*, in their study on intake of radionuclides with the diet in uranium mining areas, confirmed the fact that the largest contribution to radiation dose from the diet comes from ^{210}Po in vegetables and from ^{226}Ra as well (Carvalho *et al.*, 2014).

4 Conclusion

Activity concentrations of ^{210}Po in cocoa beans and cocoa leaves collected from Lolodorf HBRA were determined using alpha spectrometry. Activity concentrations in cocoa leaves were higher than in the cocoa beans. It may conclude that the unsupported ^{210}Po in air is deposited onto leaves and thus result in a higher ^{210}Po concentration. Ingestion doses to the public resulting from the consumption of cocoa powder were estimated and the results revealed that children are more

Table 3. Effective radiation dose extrapolated to annual basis for members of public.

Locality	Location ID	Absorbed dose from ingestion (mSv/year)			
		More than 2 to 7 years	More than 7 to 12 years	More than 12 to 17	Adult
Melondo	M1	0.106	0.063	0.038	0.029
	M2	0.212	0.125	0.077	0.058
	M3	0.193	0.114	0.070	0.053
	M4	0.156	0.093	0.057	0.043
	M5	0.177	0.105	0.064	0.048
Ngombas	N1	0.223	0.132	0.081	0.061
	N2	0.370	0.219	0.135	0.101
	N3	0.293	0.173	0.107	0.080
	N4	0.189	0.111	0.069	0.051
	N5	0.352	0.208	0.128	0.096
Maximum	–	0.370	0.219	0.135	0.101
Minimum	–	0.106	0.063	0.038	0.029
Mean	–	0.227	0.134	0.083	0.062
Standard deviation	–	0.087	0.051	0.031	0.023

expose than adults. Values of ingestion dose due to ^{210}Po in the study area were relatively high compared to those obtained from study performed in Qena city of Egypt and in the same range with the study performed at Kalpakkam, India.

Funding

This work was supported by the IAEA through the technical cooperation project CMR/9/005 on upgrading radiation protection infrastructures to ensure the implementation of radiation protection milestones 1 and 2, taking into account the protection against NORMs [Grant number CMR 12002].

Acknowledgments. The authors thank the supervisors, Dr. Fernando Carvalho and his collaborators who are staff members of the Environmental Radioactivity Laboratory of the Technological and Nuclear Institute of Lisbon, Portugal for their continuous efforts and scientific guidance during this work.

References

- Ben-Bolie GH, Ele Abiama P, Owono Ateba P, El Khoukhi T, El Moursli RC. 2013. Transfer of ^{238}U and ^{232}Th from soil to plant in a high background radiation area of the southwestern region of Cameroon. *Radiat. Prot. Dosim.* 157(2): 298–302.
- Beyala Ateba JF, Owono AP, Ben-Bolie GH, Ekobena FH, Ele AP, Abega CR, Mvondo S. 2010. Natural background dose measurements in south Cameroon. *Radiat. Prot. Dosim.* 140(1): 81–88.
- Beyala Ateba JF, Owono AP, Ben-Bolie GH, Ekobena FH, Ele AP, Abega CR, Mvondo S. 2011. Determination of uranium in rock and soil of South Cameroon. *Radioisotope* 60(10): 399–408.
- Beyala Ateba JF, Owono Ateba AP, Simo A, Ben-Bolie GH, Ekobena FH, Abega CR, Mvondo S. 2017. Estimation of radiation hazard indices from syenite building rocks in the South-western region of Cameroon. *Radioprotection* 52: 277–280.
- Bulman RA, Ewers LW, Matsumoto K. 1995. Investigations of the potential bioavailability of ^{210}Po in some foodstuffs. *Sci. Total Environ.* 173(174): 151–158.
- Carvalho FP, Oliveira JM, Malta M. 2014. Intake of radionuclides with the diet in uranium mining areas. *Proc. Earth Planetary Sci.* 8: 43–47.
- Champaud J. 1966. L'économie cacaoyère du Cameroun. *Cah. ORSTOM, sér. Sci. hum.* III 3.
- Coppin F, Roussel-Debet S. 2004. Comportement du ^{210}Po en milieu terrestre : revue bibliographique. *Radioprotection* 39: 39–58.
- Ele Abiama P, Owono Ateba P, Ekobena FH, Ben-Bolie GH, El Khoukhi T. 2010. High background radiation investigated by gamma spectrometry of the soil in the southwestern region of Cameroon. *J. Environ. Radioact.* 101: 739–743.
- Francis CW, Chesters G, Erhardt WH. 1968. ^{210}Po entry into plants. *Environ. Sci. Technol.* 2(9): 691–695.
- ICRP Publication 72. 1996. *Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides, part 5 compilation of ingestion and inhalation dose coefficients.* Ann. ICRP 26. Oxford, UK : Elsevier Science.
- International atomic energy agency. 2010. Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments. IAEA Technical Reports Series 472.
- International atomic energy agency. 2017. The environmental behavior of Polonium. IAEA Technical reports series 484.
- Kannan V, Iyengar MAR, Ramesh R. 2001. Dose estimates to the public from ^{210}Po ingestion via dietary sources at Kalpakkam (India). *Appl. Radiat. Isot.* 54: 663–674.
- Karali T, Olmez S, Yener G. 1996. Study of spontaneous deposition of ^{210}Po on various metals and application for activity assessment in cigarette smoke. *Appl. Radiat. Isot.* 47: 409–411.
- Martin P, Ryan B. 2004. Natural-series radionuclides in traditional Aboriginal foods in tropical northern Australia: a review. *Sci. World. J.* 4: 77–95.
- Maurizot P, Abessolo A, Feybesse JL, Johan V, Lecomte P. 1986. *Étude et prospection minière du Sud-Ouest Cameroun, Synthèse des travaux du BRGM, de 1978 à 1985.*

- Mvondo S, Ben-Bolie GH, Ema'a JM, Owono Ateba P, Ele Abiama P, Beyala Ateba JF. 2017. Study of soil-fern transfer of naturally occurring alpha emitting radionuclides in the southern region of Cameroon. *J. Environ. Radioact.* 180: 114–119.
- Pietrzak-Flis Z, Skowronska-Smolak M. 1995. Transfer of ^{210}Pb and ^{210}Po to plants *via* root system and above-ground inception. *Sci. Total Environ.* 162: 139–147.
- Saïdou Shinji T, Mirosław J, Bineng GS, Abdourahimi Ndjana Nkoulou JE. 2015. Radon-thoron discriminative measurements in the high natural radiation areas of southwestern Cameroon. *J. Environ. Radioact.* 150: 242–246.
- Salahel DK. 2011. Determination of ^{210}Po in various foodstuffs and its annual effective dose to inhabitants of Qena City, Egypt. *Sci. Total Environ.* 409: 5301–5304.
- Santos PL, Gouvea RC, Dutra IR, Gouvea VA. 1990. Accumulation of ^{210}Po in foodstuffs cultivated in farms around the Brazilian mining and milling facilities on Pocos de Caldas Plateau. *J. Environ. Radioact.* 11: 141–149.
- Skwarzec B, Struminska DI, Ulatowski J, Golebiowski M. 2001. Determination and distribution of ^{210}Po in tobacco plants from Poland. *J. Radioanal. Nuc. Chem.* 250(2): 319–322.
- UNSCEAR. 2000. Sources, effects and risks of ionizing radiation. New York, United Nations.

Cite this article as: Mvondo S, Beyala Ateba JF, Ben-Bolie GH, Owono Ateba P, Simo A, Ekobena HF. 2018. Dose estimates to the public due to ^{210}Po ingestion *via* cocoa powder from Lolodorf high background radiation area, Cameroon. *Radioprotection*, <https://doi.org/10.1051/radiopro/2018022>.