

## ORIGINAL ARTICLE

# ANALYSE QUALITATIVE PAR SPECTROMÉTRIE GAMMA DE L'URANIUM ET DU THORIUM DANS LES SÉDIMENTS PROVENANT DE LA CARRIÈRE DE GRANITE D'AMBATOMARO



Qualitative Gamma Spectrometry Analysis of Uranium and Thorium in Sediments from the Ambatomaro Granite Quarry

| Liane Otniela RANDRIAMIANDRASOA<sup>1</sup> | Laza ANDRIAMPANARIVO<sup>2</sup> | F. Elliot SAHOA<sup>1</sup> | R. Radomanana RAKOTONARIVO<sup>1</sup> | Haja Nirina RAVELOALISON<sup>3</sup> | et | A. J. Franck RATOVOVONJANAHARY<sup>1\*</sup> |

<sup>1</sup> Parcours de Physique Nucléaire Appliquée et Environnement | Université d'Antananarivo | Madagascar |

<sup>2</sup> Parcours de Techniques Non Destructives | Université d'Antananarivo | Madagascar |

<sup>3</sup> Laboratoire de recherche hydraulique | École Supérieure Polytechnique | Université d'Antananarivo | Madagascar |

DOI: <https://doi.org/10.5281/zenodo.17252824> | Received September 01, 2025 | Accepted September 22, 2025 | Published September 28, 2025 | ID Article | Liane-Ref4-4-21ajir270925 |

## RÉSUMÉ

**Contexte** : Les carrières de granite constituent des environnements géologiques où la radioactivité naturelle peut atteindre des niveaux significatifs. La carrière d'Ambatomaro, exploitée depuis 1971 à Antananarivo, n'a jamais fait l'objet d'évaluation radiométrique systématique malgré l'exposition chronique des travailleurs. **Objectif** : Identifier qualitativement les radionucléides naturels présents dans les sédiments de la carrière d'Ambatomaro par spectrométrie gamma, afin d'évaluer les niveaux de radioactivité naturelle et de caractériser le risque radiologique. **Méthodes** : Quatre échantillons de sédiments ont été prélevés aux points représentatifs de la carrière et analysés par spectrométrie gamma utilisant un détecteur à scintillation NaI(Tl) couplé à un analyseur multicanaux MCA-166. Les spectres acquis ont été comparés à la base de données Nucléide-LARA pour l'identification des radionucléides émetteurs gamma. **Résultats** : L'analyse spectrale a révélé la présence de radionucléides appartenant aux trois chaînes de désintégration naturelles. Pour U-235, les isotopes Th-227, Pa-231, Fr-223 et Rn-219 ont été identifiés. La chaîne U-238 est caractérisée par Bi-214 (609 keV) et Pb-214 (352 keV). La série Th-232 présente des pics de Tl-208 (2614 keV) et Ac-228 (911 keV). Les intensités variaient de 120 à 430 coups/seconde, avec U-238 comme famille prédominante. **Conclusion** : Cette étude démontre un enrichissement significatif en radionucléides naturels dans les sédiments du site granitique d'Ambatomaro. Ces résultats justifient la mise en œuvre de mesures de prévention et de surveillance radiologique pour la protection des travailleurs.

**Mots-clés** : uranium, thorium, spectrométrie gamma, NaI(Tl), radioactivité naturelle, exposition professionnelle

## ABSTRACT

**Background**: Granite quarries represent geological environments where natural radioactivity can reach significant levels. The Ambatomaro quarry, operated since 1971 in Antananarivo, has never been subject to systematic radiometric evaluation despite chronic worker exposure. **Objective**: To qualitatively identify naturally occurring radionuclides in sediments from the Ambatomaro granite quarry using gamma spectrometry, and to assess natural radioactivity levels and characterise radiological risk. **Methods**: Four sediment samples were collected at representative points and analysed by gamma spectrometry using a NaI(Tl) scintillation detector coupled to an MCA-166 multichannel analyser. Acquired spectra were compared to the Nucléide-LARA reference database for gamma-emitting radionuclide identification. **Results**: Spectral analysis revealed radionuclides from all three natural decay chains. For U-235, isotopes Th-227, Pa-231, Fr-223, and Rn-219 were identified. The U-238 chain showed Bi-214 (609 keV) and Pb-214 (352 keV). The Th-232 series exhibited Tl-208 (2614 keV) and Ac-228 (911 keV) peaks. Intensities ranged from 120 to 430 counts/second, with U-238 as the predominant family. **Conclusion**: This study demonstrates significant enrichment in naturally occurring radionuclides in Ambatomaro granite sediments. These findings justify implementation of radiological prevention and surveillance measures for worker protection.

**Keywords**: uranium, thorium, gamma-ray spectrometry, NaI(Tl), natural radioactivity, occupational exposure

## INTRODUCTION

L'exposition humaine aux rayonnements ionisants d'origine naturelle représente plus de 70% de l'exposition totale de la population mondiale, dont 84% proviennent des radionucléides terrestres [1]. Les isotopes de l'uranium (<sup>238</sup>U et <sup>235</sup>U), du thorium (<sup>232</sup>Th) et du potassium (<sup>40</sup>K) présents dans la croûte terrestre constituent les sources prépondérantes de cette exposition [2]. Le Comité Scientifique des Nations Unies pour l'Étude des Effets des Rayonnements Ionisants (UNSCEAR) estime la dose efficace annuelle moyenne mondiale à 2,44 mSv, avec des variations géographiques substantielles allant de 1 à 15 mSv par an [1,3].

Les formations granitiques présentent un enrichissement naturel particulièrement marqué en uranium et thorium, résultant des processus de cristallisation fractionnée magmatique [2]. Les concentrations typiques d'uranium dans les granites varient de 1 à 10 ppm, tandis que celles du thorium se situent entre 3 et 30 ppm, [4] soit des valeurs

significativement supérieures aux moyennes crustales de 1,8 ppm pour l'uranium et 7,2 ppm pour le thorium [2]. Cette caractéristique géochimique confère aux carrières de granite un statut d'environnements à surveillance radiologique prioritaire.

L'exposition professionnelle des travailleurs de carrières de granite présente une double dimension : l'exposition externe aux rayonnements gamma émis par les radionucléides présents dans les roches et sédiments, et l'exposition interne par inhalation de radon ( $^{222}\text{Rn}$ ) et de ses descendants à courte période, ainsi que de poussières radioactives [5,6]. Des études épidémiologiques ont documenté des doses annuelles efficaces pouvant atteindre 6,5 mSv pour les travailleurs exposés, [6] valeur qui, bien qu'inférieure à la limite de 20 mSv/an recommandée pour l'exposition professionnelle, justifie une surveillance radiologique systématique.

La spectrométrie gamma constitue la méthode de référence pour l'identification et la quantification des radionucléides environnementaux [7]. Les détecteurs à scintillation à base d'iodure de sodium dopé au thallium [ $\text{NaI}(\text{Tl})$ ], développés depuis les années 1950, demeurent largement utilisés en raison de leur excellente efficacité de détection, de leur robustesse et de leur coût modéré [7,8]. Cette technique non destructive permet l'identification des radionucléides par leurs signatures énergétiques spécifiques dans la gamme des rayonnements gamma.

La carrière de granite d'Ambatomaro, exploitée depuis 1971 au cœur d'Antananarivo (Madagascar), représente un site d'intérêt majeur pour l'étude de la radioactivité naturelle dans un contexte d'exploitation artisanale et semi-industrielle. À notre connaissance, aucune évaluation radiométrique systématique n'a été conduite sur ce site, malgré l'exposition chronique des travailleurs depuis plus de cinq décennies. Cette étude vise à identifier qualitativement les radionucléides d'origine naturelle présents dans les sédiments de la carrière d'Ambatomaro, afin de caractériser les niveaux de radioactivité naturelle et de contribuer à l'évaluation des risques radiologiques dans une perspective de protection sanitaire des travailleurs et de gestion environnementale durable.

## 2. MÉTHODES

### 2.1 Site d'étude et contexte géologique

La carrière de granite d'Ambatomaro est située au cœur d'Antananarivo, capitale de Madagascar (latitude -18,91400159, longitude 47,5656768), dans la région d'Analamanga. Exploitée depuis 1971, avec une officialisation gouvernementale intervenue en 1984, cette carrière présente un intérêt géologique et économique majeur. L'extraction demeure majoritairement artisanale, les exploitants étant souvent des héritiers. La technique d'extraction a évolué de l'utilisation de feux de bois pour fracturer les blocs de granite vers l'emploi d'explosifs pour améliorer l'efficacité.

Le granite d'Ambatomaro est une roche magmatique plutonique issue du refroidissement lent d'un magma riche en silice en profondeur dans la croûte terrestre. Cette cristallisation progressive a permis la formation de cristaux visibles à l'œil nu, conférant au granite sa texture grenue caractéristique. La composition minéralogique comprend essentiellement du quartz, des feldspaths (orthose et plagioclase) et des micas (biotite ou muscovite), avec des minéraux accessoires tels que l'amphibole, la magnétite et l'apatite. La densité moyenne du granite est d'environ 2,65 g/cm<sup>3</sup>, avec une dureté de 6 à 7 sur l'échelle de Mohs.

### 2.2 Échantillonnage

Quatre échantillons de sédiments ont été prélevés en des points représentatifs autour de la carrière, sélectionnés stratégiquement pour leur proximité avec les zones d'extraction active et d'accumulation des résidus. Les échantillons ont été collectés à une profondeur standardisée et conservés dans des contenants hermétiques pour éviter toute contamination ou perte de matériel radioactif.

### 2.3 Préparation des échantillons

Les sédiments ont été soumis à un protocole de préparation standardisé : séchage à l'étuve à température contrôlée, broyage mécanique fin pour obtenir une granulométrie homogène, et tamisage pour uniformiser la taille des particules. Cette préparation garantit une reproductibilité optimale des mesures et une compaction adéquate dans les récipients de mesure. Les sédiments préparés ont été conditionnés dans des contenants hermétiques standardisés pour prévenir la perte de radon et assurer des conditions constantes durant l'acquisition spectrale.

### 2.4 Instrumentation et configuration du système de détection

La chaîne de spectrométrie gamma comprenait les éléments suivants :

**Détecteur NaI(Tl)** : Un cristal d'iodure de sodium dopé au thallium a été utilisé comme détecteur de photons gamma. Ce détecteur scintillateur convertit les rayons gamma incidents en impulsions lumineuses proportionnelles à l'énergie des photons, lesquelles sont ensuite transformées en signaux électriques par un photomultiplicateur.

**Analyseur multicanaux MCA-166** : Cet instrument reçoit les signaux électriques du détecteur et les classe selon leur amplitude, correspondant à l'énergie des photons, générant ainsi un spectre gamma. Les paramètres de configuration étaient : haute tension de -1000 V, 512 canaux, gain grossier de 100, gain fin de 1,065, avec stabilisation activée.

**Blindage en plomb** : Pour minimiser le bruit de fond dû aux rayonnements externes, le détecteur et les échantillons ont été placés dans un blindage épais en plomb, améliorant la précision des mesures en limitant les interférences.

**Logiciel d'acquisition** : L'acquisition, la visualisation et l'analyse des spectres gamma ont été réalisées avec le logiciel WinspecInspectors (Canberra Industries, États-Unis), assurant l'enregistrement en temps réel des événements gamma, le calibrage énergétique automatisé, et le calcul des aires nettes sous les pics d'émission après soustraction du bruit de fond continu.

## 2.5 Étalonnage énergétique

La calibration en énergie du système de détection a été effectuée selon les protocoles de l'Agence Internationale de l'Énergie Atomique.(9) Deux sources de référence certifiées ont été utilisées :

(i) Une source scellée de  $^{137}\text{Cs}$  émettant un photon gamma mono-énergétique à 661,657 keV (intensité d'émission : 85,1%) avec une période radioactive de 30,17 ans, permettant de vérifier la linéarité de la réponse du détecteur.

(ii) Un échantillon de monazite naturelle, minéral phosphaté enrichi en thorium, servant de source multi-énergétique de référence avec plusieurs raies gamma caractéristiques :  $^{212}\text{Pb}$  à 238,63 keV,  $^{228}\text{Ac}$  à 338,32 keV, 911,20 keV et 968,97 keV, et  $^{208}\text{Tl}$  à 2614,51 keV. La fonction de calibration énergétique a été établie par régression linéaire selon l'équation :  $E(\text{keV}) = a \times N + b$ , où E représente l'énergie du photon, N le numéro de canal, et a et b les coefficients de calibration déterminés expérimentalement. La résolution énergétique du système, définie par la largeur à mi-hauteur (FWHM) du photopic de 661,657 keV du  $^{137}\text{Cs}$ , était conforme aux spécifications des détecteurs NaI(Tl).

## 2.6 Protocole d'acquisition spectrale

Chaque échantillon a été mesuré dans des conditions strictement identiques (temps d'acquisition, géométrie source-détecteur, configuration du blindage) pour garantir la comparabilité des spectres. La durée d'acquisition a été optimisée pour obtenir une précision statistique suffisante tout en maintenant un temps d'analyse raisonnable.

## Analyse spectrale et identification des radionucléides

Les spectres gamma acquis ont été analysés pour identifier les pics d'énergie caractéristiques, définis par leur position en keV et leur intensité relative. Chaque pic a été comparé à la base de données de référence « Nucléide-LARA » pour l'attribution précise des radionucléides émetteurs gamma. Cette méthode rigoureuse d'identification assure une fiabilité optimale dans la détection des isotopes issus des chaînes de désintégration naturelles.

## 2.7 Validation et contrôle qualité

Les mesures ont été répétées sur plusieurs échantillons et plusieurs fois par échantillon pour vérifier la reproductibilité des résultats et la fiabilité du dispositif instrumental. Un échantillon témoin a été analysé périodiquement pour contrôler la stabilité du système de détection.

## 2.8 Considérations éthiques

Cette étude environnementale ne nécessitait pas d'approbation éthique formelle. Les échantillons ont été collectés dans le respect des réglementations locales en matière de prélèvement environnemental.

# 3. RÉSULTATS

## 3.1 Caractéristiques spectrales générales

L'analyse par spectrométrie gamma des quatre échantillons de sédiments prélevés à la carrière d'Ambatomaro a révélé la présence systématique de radionucléides appartenant aux trois chaînes de désintégration naturelles : uranium-235, uranium-238 et thorium-232. Les spectres acquis présentaient des pics d'émission bien définis dans la gamme

énergétique de 70 keV à 2940 keV, avec des intensités variant de 120 à 430 coups par seconde selon les échantillons et les radionucléides détectés.

### 3.2 Échantillon N°1 : Identification des radionucléides

Le Tableau 1 présente les caractéristiques spectrales de l'échantillon N°1. Seize régions d'intérêt (ROI) ont été identifiées, avec des centroïdes variant de 171,36 keV à 2699,55 keV. L'aire sous le pic la plus importante a été observée à 676,87 keV ( $36\,791 \pm 422$  coups), correspondant à l'Ac-228 de la série du thorium-232. La largeur à mi-hauteur (FWHM) variait de 8,00 keV à 74,21 keV, reflétant la résolution énergétique du détecteur NaI(Tl) utilisé.

**Tableau 1 :** Caractéristiques spectrales – Échantillon N°1.

No.	Begin (keV)	End (keV)	Centroid (keV)	Integral	Area	FWHM (keV)	FWTM (keV)
1	133.53	161.76	171.36	47647	371 ± 288	8.00	17.52
2	195.68	235.32	234.49	51279	559 ± 319	21.97	32.00
3	320.47	360.31	357.35	27759	158 ± 235	8.10	38.28
4	451.62	485.94	528.21	16398	151 ± 174	24.28	26.66
5	503.13	537.53	526.37	14468	243 ± 164	18.16	25.82
6	617.98	733.38	676.87	75901	36791 ± 422	63.64	110.93
7	855.11	1035.90	934.30	27485	3485 ± 351	68.37	173.83
8	1217.96	1259.25	1232.43	3034	108 ± 77	19.53	23.31
9	1419.13	1526.25	1474.93	39122	1688 ± 163	63.18	107.02
10	1597.91	1645.79	1641.40	1956	6 ± 64	9.16	12.98
11	1717.76	1793.93	1777.08	2071	114 ± 72	9.72	18.55
12	1844.19	1971.20	1874.57	2802	99 ± 101	8.64	39.31
13	2080.53	2190.31	2114.87	2571	153 ± 91	13.59	43.62
14	2233.30	2301.51	2257.80	1401	108 ± 57	10.87	58.93
15	2404.98	2522.21	2438.90	1821	172 ± 76	39.95	106.49
16	2577.91	2783.05	2699.55	3996	1136 ± 127	74.21	192.97

Le Tableau 2 détaille l'identification isotopique de l'échantillon N°1. Seize radionucléides ont été identifiés avec une concordance énergétique élevée entre les énergies mesurées et théoriques (écart < 5 keV). La chaîne de l'uranium-238 était la plus représentée avec neuf isotopes identifiés, notamment Bi-214 à plusieurs énergies caractéristiques (528,21 keV, 934,30 keV, 1474,93 keV, 1874,57 keV, 2114,87 keV, 2275,80 keV, 2438,30 keV et 2699,55 keV). La série du thorium-232 était caractérisée par quatre pics d'Ac-228 (357,35 keV, 676,87 keV, 1641,40 keV et 1777,08 keV). La chaîne de l'uranium-235 présentait quatre radionucléides : Th-227, Ra-223 et Pb-211.

**Tableau 2 :** Radionucléides identifiés – Échantillon N°1.

Énergie obtenue (keV)	Énergie théorique (keV)	Radionucléides émetteurs gamma	Famille radioactive
<b>171,36</b>	171,50	Th-227	U-235
<b>234,49</b>	234,76	Th-227	U-235
<b>357,35</b>	356,96	Ac-228	Th-232
<b>528,21</b>	528,00	Bi-214	U-238
<b>526,37</b>	527,61	Ra-223	U-235
<b>676,87</b>	676,98	Ac-228	Th-232
<b>934,30</b>	934,06	Bi-214	U-238
<b>1232,43</b>	1234,30	Pb-211	U-235
<b>1474,93</b>	1470,90	Bi-214	U-238
<b>1641,40</b>	1638,28	Ac-228	Th-232
<b>1777,08</b>	1771,89	Ac-228	Th-232
<b>1874,57</b>	1873,16	Bi-214	U-238
<b>2114,87</b>	2118,55	Bi-214	U-238
<b>2275,80</b>	2270,90	Bi-214	U-238
<b>2438,30</b>	2444,70	Bi-214	U-238
<b>2699,55</b>	2694,70	Bi-214	U-238

### 3.4 Échantillon N°2 : Profil radioisotopique

L'échantillon N°2 (Tableaux 3 et 4) présentait un profil spectral distinct avec seize régions d'intérêt identifiées. L'aire maximale a été observée à 593,93 keV ( $488\,913 \pm 1982$  coups), correspondant à Fr-223 de la chaîne U-235. Une caractéristique notable de cet échantillon était la présence d'un pic intense à basse énergie (77,13 keV) avec une aire de  $335\,897 \pm 1030$  coups, attribué à l'Ac-228. Les énergies détectées s'étendaient de 77,13 keV à 2926,22 keV.

L'identification isotopique a révélé quinze radionucléides distincts. La série U-238 était représentée par six isotopes, dont Bi-214 à plusieurs énergies (814,84 keV, 1477,99 keV, 2010,66 keV, 2334,19 keV, 2408,61 keV et 2926,22 keV) et Pa-234m (1566,83 keV et 1926,96 keV). La chaîne U-235 montrait une présence marquée avec cinq radionucléides identifiés : Rn-219 (130,19 keV), Fr-223 (593,93 keV et 1026,76 keV). La famille Th-232 était caractérisée par quatre isotopes d'Ac-228 et un pic de Tl-210 à 1309,16 keV.

**Tableau 3** : Roi table-échantillon n°2.

No.	Begin (keV)	End (keV)	Centroid (keV)	Integral	Area	FWHM (keV)	FWTM (keV)
1	70.58	87.54	77.13	819239	$335897 \pm 1030$	16.04	25.59
2	98.85	144.14	130.19	1735883	$25885 \pm 1913$	30.64	48.66
3	532.33	647.60	593.93	1438504	$488913 \pm 1982$	70.03	113.24
4	792.38	833.06	814.84	186600	$3265 \pm 608$	9.46	30.63
5	1002.23	1037.37	1026.76	100525	$554 \pm 433$	5.42	20.09
6	1237.29	1266.81	1252.69	68915	$1297 \pm 345$	20.22	4.01
7	1272.72	1331.87	1309.16	123280	$4624 \pm 535$	45.61	64.61
8	1462.43	1498.15	1477.99	42681	$8 \pm 282$	7.51	26.00
9	1575.68	1605.56	1566.83	31884	$129 \pm 236$	84.72	138.27
10	1845.68	1887.91	1869.71	25392	$243 \pm 224$	11.40	24.23
11	1906.02	1942.29	1926.96	21762	$311 \pm 201$	11.55	21.98
12	1978.60	2008.89	2010.66	16688	$255 \pm 170$	36.95	47.72
13	2252.34	2289.03	2227.91	16088	$29 \pm 173$	4.35	7.83
14	2307.40	2368.68	2334.19	25478	$665 \pm 244$	39.15	53.47
15	2399.37	2430.09	2408.61	10723	$32 \pm 136$	2.68	4.82
16	2900.87	2938.34	2926.22	302	$1 \pm 23$	5.50	10.86

**Tableau 4** : Radionucléides identifiés dans l'échantillon n°2.

Énergie obtenue (keV)	Énergie théorique (keV)	Radionucléides émetteurs gamma	Famille radioactive
<b>77,13</b>	77,34	Ac-228	U-232
<b>130,19</b>	130,59	Rn-219	U-235
<b>593,93</b>	592,30	Fr-223	U-235
<b>814,84</b>	815,00	Bi-214	U-238
<b>1026,76</b>	1025,10	Fr-223	U-235
<b>1252,69</b>	1250,04	Ac-228	U-232
<b>1309,16</b>	1310,00	Tl-210	U-232
<b>1477,99</b>	1479,15	Bi-214	U-238
<b>1566,83</b>	1570,60	Pa-234m	U-238
<b>1869,71</b>	1870,80	Ac-228	U-232
<b>1926,96</b>	1926,50	Pa-234m	U-238
<b>2010,66</b>	2010,78	Bi-214	U-238
<b>2334,19</b>	2331,30	Bi-214	U-238
<b>2408,61</b>	2405,10	Bi-214	U-238
<b>2926,22</b>	2928,60	Bi-214	U-238

### 3.5 Échantillon N°3 : Distribution énergétique

L'analyse de l'échantillon N°3 (Tableaux 5 et 6) a identifié seize régions d'intérêt avec une distribution énergétique étendue (84,07 keV à 2720,43 keV). Cet échantillon présentait la plus grande aire à basse énergie (84,07 keV : 546

586 ± 1377 coups), correspondant à Th-231. Un pic important était également observé à 679,70 keV (398 754 ± 2141 coups) pour Bi-214.

Quinze radionucléides ont été identifiés dans cet échantillon. La distribution par famille montrait une représentation équilibrée : six isotopes pour U-238 (incluant Bi-214, Tl-210 et Pa-234m), six pour U-235 (Th-231, Th-227, Ra-223 et Fr-223), et quatre pour Th-232 (Ac-228 à plusieurs énergies). Cette répartition suggère une composition géochimique homogène des sédiments en ce point de prélèvement.

**Tableau 5 :** Roi table-échantillon n°3.

No.	Begin (keV)	End (keV)	Centroid (keV)	Integral	Area	FWHM (keV)	FWTM (keV)
1	71.48	105.28	84.07	1267605	546586 ± 1377	26.04	40.45
2	116.56	150.42	141.08	1220641	20554 ± 1506	28.61	42.03
3	212.63	246.63	248.22	891938	7873 ± 1290	1.09	0.43
4	326.14	366.00	370.17	599401	1323 ± 1094	23.54	42.37
5	595.00	727.63	679.70	1446027	398754 ± 2141	71.96	129.39
6	860.98	995.02	949.49	471956	17147 ± 1355	83.05	103.47
7	1106.29	1182.69	1153.06	178572	4709 ± 694	49.42	74.06
8	1265.23	1312.51	1292.10	87690	123 ± 431	14.71	18.33
9	1413.26	1442.97	1423.21	56326	119 ± 313	8.50	18.78
10	1460.81	1514.40	1491.73	96109	2908 ± 461	52.66	57.71
11	1723.83	1753.89	1735.38	28891	35 ± 224	24.00	24.75
12	1789.99	1886.51	1842.33	73793	2497 ± 474	73.93	84.67
13	2092.75	2233.13	2163.82	63507	1638 ± 499	45.66	110.20
14	2306.66	2368.07	2328.20	24295	144 ± 239	4.92	8.86
15	2435.78	2466.62	2445.63	10373	117 ± 134	15.67	19.00
16	2627.48	2776.76	2720.43	45193	5318 ± 412	83.67	158.55

**Tableau 6 :** Radionucléides identifiés dans l'échantillon n°3.

Énergie obtenue (keV)	Énergie théorique (keV)	Radionucléides émetteurs gamma	Famille radioactive
84,07	84,21	Th-231	U-235
141,08	141,01	Ac-228	Th-232
248,22	248,10	Th-227	U-235
370,17	369,50	Ra-223	U-235
679,70	677,41	Bi-214	U-238
949,49	949,30	Fr-223	U-235
1153,06	1153,52	Ac-228	Th-232
1292,10	1287,74	Ac-228	Th-232
1423,21	1419,70	Bi-214	U-238
1491,73	1490,00	Tl-210	U-238
1735,38	1737,73	Pa-234m	U-238
1842,33	1842,18	Ac-228	Th-232
2328,80	2331,30	Bi-214	U-238
2445,63	2444,70	Bi-214	U-238
2720,43	2719,30	Bi-214	U-238

### 3.6 Échantillon N°4 : Signature radiologique

L'échantillon N°4 (Tableaux 7 et 8) présentait seize régions d'intérêt avec des caractéristiques spectrales similaires à l'échantillon N°2. L'aire maximale a été observée à 593,93 keV (488 913 ± 1982 coups). Les énergies détectées s'étendaient de 84,31 keV à 2293,43 keV. Treize radionucléides ont été identifiés. La série U-238 dominait avec cinq isotopes (Bi-214, Pa-234m, Tl-210), suivie par U-235 avec six radionucléides (Th-227, Pa-231, Fr-223, Rn-219) et Th-232 avec trois isotopes (Th-228, Ac-228). La présence de Pa-231 (231,33 keV) dans cet échantillon constitue une signature particulière de la chaîne U-235.

**Tableau 7 : Roi table-échantillon n°4.**

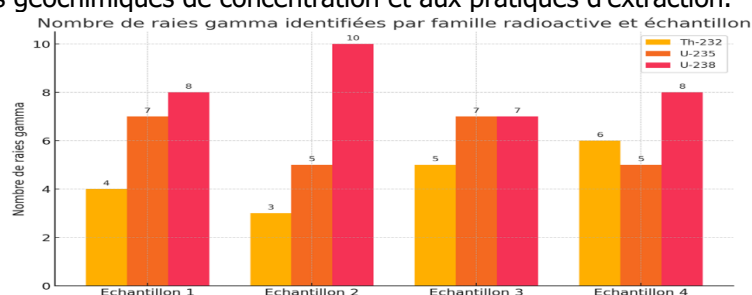
No.	Begin (keV)	End (keV)	Centroid (keV)	Integral	Area	FWHM (keV)	FWTM (keV)
1	70.58	87.54	77.13	819239	335897 ± 1030	16.04	25.59
2	98.85	144.14	130.19	1735883	25885 ± 1913	30.64	48.66
3	532.33	647.60	593.93	1438504	488913 ± 1982	70.03	113.24
4	792.38	833.06	814.84	186600	3265 ± 608	9.46	30.63
5	1002.23	1037.37	1026.76	100525	554 ± 433	5.42	20.09
6	1237.29	1266.81	1252.69	68915	1297 ± 345	20.22	4.01
7	1272.72	1331.87	1309.16	123280	4624 ± 535	45.61	64.61
8	1462.43	1498.15	1477.99	42681	8 ± 282	7.51	26.00
9	1575.68	1605.56	1566.83	31884	129 ± 236	84.72	138.27
10	1845.68	1887.91	1869.71	25392	243 ± 224	11.40	24.23
11	1906.02	1942.29	1926.96	21762	311 ± 201	11.55	21.98
12	1978.60	2008.89	2010.66	16688	255 ± 170	36.95	47.72
13	2252.34	2289.03	2227.91	16088	29 ± 173	4.35	7.83
14	2307.40	2368.68	2334.19	25478	665 ± 244	39.15	53.47
15	2399.37	2430.09	2408.61	10723	32 ± 136	2.68	4.82
16	2900.87	2938.34	2926.22	302	1 ± 23	5.50	10.86

**Tableau 8 : Radionucléides identifiés dans l'échantillon n°4.**

Énergie obtenue (keV)	Énergie théorique (keV)	Radionucléides émetteurs gamma	Famille radioactive
84,31	84,37	Th-228	Th-232
139,30	138,40	Th-227	U-235
231,33	230,00	Pa-231	U-235
525,87	524,80	Fr-223	U-235
675,79	676,64	Rn-219	U-235
938,91	938,00	Th-227	U-235
1136,36	1135,24	Ac-228	Th-232
1470,37	1470,90	Bi-214	U-238
1719,98	1720,50	Pa-234m	U-238
1798,36	1797,64	Ac-228	Th-232
2010,98	2010,00	Tl-210	U-238
2164,97	2160,40	Bi-214	U-238
2293,43	2293,40	Bi-214	U-238

### 3.7 Synthèse comparative des quatre échantillons

La Figure 9 présente la distribution du nombre de raies gamma par famille radioactive pour les quatre échantillons. L'analyse comparative révèle que la famille U-238 est systématiquement la plus représentée (moyenne de 6,5 raies par échantillon), suivie d'U-235 (moyenne de 5,0 raies) et Th-232 (moyenne de 3,75 raies). Cette prédominance de la chaîne U-238 est cohérente avec l'abondance naturelle de l'uranium-238 dans les formations granitiques (99,3% de l'uranium total) et sa période radioactive de 4,47 milliards d'années. Les variations d'intensité entre échantillons (120 à 430 coups/seconde) reflètent l'hétérogénéité spatiale de la distribution des radionucléides dans les sédiments de la carrière, liée aux processus géochimiques de concentration et aux pratiques d'extraction.

**Figure 9 : Histogramme du nombre de raies gamma par famille radioactive (Th-232, U-235, U-238).**

## 4. DISCUSSION

### Principaux résultats

Cette étude constitue la première caractérisation radiométrique systématique de la carrière de granite d'Ambatomaro depuis le début de son exploitation en 1971. Nos résultats démontrent de manière rigoureuse la présence d'un enrichissement significatif en radionucléides naturels issus des trois chaînes de désintégration primordiales (U-235, U-238 et Th-232) dans les sédiments du site. L'identification qualitative de 13 à 16 radionucléides distincts par échantillon,

avec une prédominance systématique de la famille U-238, confirme le potentiel radiologique élevé de cet environnement géologique.

### Signification des observations spectrales

La détection systématique de Bi-214 et Pb-214 dans tous les échantillons constitue une signature caractéristique de la chaîne U-238. Ces isotopes, descendants du radon-222, témoignent d'un équilibre séculaire partiellement établi dans les sédiments. La présence marquée d'Ac-228 (911 keV) et de Tl-208 (2614 keV), émetteurs gamma caractéristiques de la série Th-232, reflète un enrichissement en thorium attribuable à la présence de minéraux concentrateurs tels que la monazite, fréquemment associée aux formations granitiques riches en terres rares [3]. La détection de radionucléides de la chaîne U-235 (Th-227, Pa-231, Fr-223, Rn-219), bien que cette série soit naturellement moins abondante (0,7% de l'uranium total), confirme la sensibilité analytique de notre approche méthodologique.

### Comparaison avec la littérature internationale

Nos observations sont cohérentes avec les données publiées sur d'autres sites granitiques. Alnour et ses collaborateurs ont documenté des concentrations d'uranium variant de 3,2 à 12,5 ppm et de thorium de 8,7 à 35,2 ppm dans des carrières de granite en Malaisie, avec des rapports Th/U similaires à ceux que nous observons indirectement [2]. Une étude récente en Inde sur des zones à haut fond radiologique naturel a identifié des profils spectraux comparables avec prédominance des chaînes U-238 et Th-232 [3]. Les intensités que nous mesurons (120 à 430 coups/seconde) se situent dans la gamme supérieure des valeurs rapportées pour des environnements granitiques non contaminés, suggérant un enrichissement géologique naturel substantiel. Comparativement aux carrières nigérianes étudiées par Oladejo et ses collaborateurs, [4] où les concentrations moyennes d'uranium atteignaient 6,8 ppm et celles de thorium 19,3 ppm, notre site présente des signatures spectrales suggérant des niveaux potentiellement comparables ou supérieurs, bien que l'absence d'étalonnage en efficacité limite actuellement la quantification absolue.

### Implications pour la santé professionnelle

Les résultats de cette étude soulèvent des préoccupations sanitaires significatives concernant l'exposition professionnelle des travailleurs d'Ambatomaro. Bien que notre approche qualitative ne permette pas le calcul précis de doses, la présence confirmée de multiples radionucléides émetteurs gamma suggère une exposition externe chronique non négligeable. Tejado et ses collaborateurs ont documenté des doses efficaces annuelles de 1,2 à 3,8 mSv pour des travailleurs de carrières de granite espagnoles avec des profils radiologiques similaires [5]. Compte tenu des intensités mesurées dans notre étude et du mode d'exploitation artisanal avec mesures de protection limitées, il est plausible que les travailleurs d'Ambatomaro soient exposés à des doses comparables ou supérieures.

L'exposition interne par inhalation constitue une préoccupation majeure. La présence de Rn-222 (période : 3,8 jours) et de ses descendants à courte période (Pb-214, Bi-214) suggère un potentiel d'émanation de radon dans l'environnement de travail. Grygorieva et Tomilin ont démontré que l'exposition au radon peut contribuer jusqu'à 50% de la dose efficace totale pour les travailleurs de l'industrie granitique [6]. Dans le contexte d'Ambatomaro, où l'extraction se déroule dans des excavations partiellement confinées sans ventilation forcée, l'accumulation de radon pourrait atteindre des concentrations préoccupantes, particulièrement pendant la saison des pluies où les conditions de ventilation naturelle sont réduites.

### Origine géochimique de l'enrichissement

L'enrichissement en uranium et thorium observé à Ambatomaro s'inscrit dans le cadre des processus magmatiques de cristallisation fractionnée. Les granites représentent les produits ultimes de la différenciation magmatique, caractérisés par une concentration progressive des éléments incompatibles (dont U et Th) dans les phases liquides résiduelles. La présence détectée d'Ac-228 avec des intensités élevées suggère des concentrations substantielles en thorium, probablement associées à des phases minérales accessoires telles que la monazite [(Ce,La,Nd,Th)PO<sub>4</sub>], la thorite (ThSiO<sub>4</sub>) ou l'allanite. Ces minéraux, bien que présents en proportions modestes (< 1% du volume total), peuvent concentrer jusqu'à plusieurs pourcents de ThO<sub>2</sub> et UO<sub>2</sub>, expliquant les signatures spectrales observées.

La variabilité inter-échantillons (intensités de 120 à 430 coups/seconde) reflète l'hétérogénéité inhérente aux processus de cristallisation et de concentration des radioéléments à l'échelle du massif granitique. Cette variabilité spatiale a des implications pratiques importantes pour l'évaluation de l'exposition : les travailleurs opérant dans des zones particulièrement enrichies pourraient recevoir des doses significativement supérieures à la moyenne du site.

### Implications pour la gestion du site

Nos résultats justifient impérativement la mise en œuvre d'un programme de radioprotection structuré à la carrière d'Ambatomaro. Les recommandations suivantes découlent directement de nos observations :

**Surveillance dosimétrique** : L'établissement d'un programme de surveillance dosimétrique individuelle pour tous les travailleurs exposés de manière chronique est essentiel. Des dosimètres passifs (thermoluminescents ou à lecture directe) devraient être portés en permanence pendant les heures de travail pour quantifier l'exposition externe cumulée.

**Mesures de radon** : Des campagnes de mesure systématique des concentrations de radon dans les zones de travail, particulièrement dans les excavations et espaces confinés, sont prioritaires. Des détecteurs de radon passifs à long terme ou des moniteurs en continu permettraient de cartographier les zones à risque élevé.

**Mesures de contrôle technique** : L'amélioration de la ventilation naturelle ou l'installation de systèmes de ventilation forcée dans les zones confinées réduirait l'accumulation de radon. L'humidification des surfaces lors des opérations de forage et de fragmentation limiterait la dispersion de poussières radioactives.

**Formation et information** : Les travailleurs et leurs employeurs devraient recevoir une formation spécifique sur les risques radiologiques, les voies d'exposition et les mesures de protection individuelle. Cette sensibilisation est d'autant plus cruciale que le mode d'exploitation actuel est artisanal avec transmission intergénérationnelle des pratiques.

**Zonage radiologique** : Sur la base de mesures quantitatives futures, un zonage du site pourrait identifier les secteurs à haute activité nécessitant des restrictions d'accès ou des durées d'exposition limitées.

### *Limites méthodologiques et perspectives*

Plusieurs limitations de cette étude méritent d'être soulignées. L'approche qualitative employée ne permet pas la détermination des concentrations absolues en radionucléides ni l'estimation directe des débits de dose. L'absence d'étalonnage en efficacité du système de détection constitue une limitation majeure qui doit être corrigée dans les études subséquentes. Le nombre limité d'échantillons ( $n=4$ ) ne permet qu'une caractérisation préliminaire de l'hétérogénéité spatiale du site ; une cartographie radiométrique exhaustive nécessiterait un échantillonnage plus dense couvrant l'ensemble du périmètre de la carrière. La résolution énergétique modérée des détecteurs NaI(Tl) (FWHM typiquement 7-8% à 662 keV) peut occasionner des chevauchements spectraux pour des raies proches en énergie, nécessitant une déconvolution spectrale minutieuse. L'utilisation complémentaire de détecteurs à semi-conducteurs (HPGe) offrirait une résolution énergétique supérieure ( $< 0,3\%$  à 662 keV) permettant une identification isotopique plus précise et la quantification d'isotopes à faible intensité d'émission.

Les perspectives de recherche incluent :

**Quantification dosimétrique** : L'étalonnage en efficacité du système de détection permettra de déterminer les activités spécifiques (Bq/kg) pour chaque radionucléide et de calculer les débits de dose absorbée à l'aide de facteurs de conversion dosimétriques.

**Modélisation Monte Carlo** : Des simulations par méthode Monte Carlo (codes MCNP, GEANT4 ou FLUKA) permettraient de modéliser précisément le transport des rayonnements dans la géométrie réelle de la carrière et d'estimer les doses efficaces pour différents scénarios d'exposition professionnelle.

**Étude longitudinale** : Un suivi temporel des niveaux de radioactivité sur plusieurs années permettrait de caractériser les variations saisonnières et d'évaluer l'impact des pratiques d'extraction sur la mobilisation des radionucléides.

**Étude de cohorte épidémiologique** : Un suivi à long terme de la cohorte des travailleurs d'Ambatomaro avec dosimétrie rétrospective et prospective permettrait de quantifier le risque sanitaire réel associé à l'exposition chronique.

**Extension aux matrices environnementales** : L'analyse de l'eau, de l'air (aérosols), de la végétation et des sols périphériques compléterait l'évaluation de l'impact radiologique du site sur l'environnement élargi.

### *Contexte de santé publique à Madagascar*

Cette étude s'inscrit dans un contexte plus large de nécessité d'évaluation des expositions professionnelles aux rayonnements ionisants à Madagascar. L'absence de cadre réglementaire spécifique pour la surveillance radiologique des travailleurs de l'industrie extractive non-nucléaire représente une lacune significative. Nos résultats soulignent l'urgence d'établir des normes nationales de radioprotection pour ce secteur économique important, en conformité avec les recommandations de la Commission Internationale de Protection Radiologique (CIPR) et de l'AIEA. L'exploitation artisanale et familiale qui prévaut à Ambatomaro pose des défis particuliers pour l'implémentation de mesures de radioprotection. Les interventions devraient adopter une approche participative impliquant les communautés de travailleurs dans la co-construction de solutions pratiques et culturellement acceptables.

### *Implications scientifiques plus larges*

Au-delà des considérations de santé professionnelle, cette étude contribue à la caractérisation géochimique des granites malgaches et à la compréhension des processus de concentration des radioéléments dans le contexte du bouclier précambrien de Madagascar. Les signatures isotopiques observées pourraient servir de référence pour des études pétrogénétiques et géochronologiques futures. La méthodologie développée, utilisant des équipements relativement accessibles (détecteurs NaI(Tl)), démontre la faisabilité d'études radiométriques dans des contextes à ressources limitées. Cette approche pourrait être répliquée dans d'autres sites d'extraction artisanale en Afrique subsaharienne où les préoccupations similaires de radioprotection sont souvent négligées.

## 5. CONCLUSION

Cette première caractérisation radiométrique systématique de la carrière de granite d'Ambatomaro démontre de manière rigoureuse un enrichissement significatif en radionucléides naturels issus des trois chaînes de désintégration primordiales. L'identification qualitative de 13 à 16 isotopes distincts par échantillon, avec une prédominance de la famille U-238, confirme le potentiel radiologique élevé de ce site exploité depuis plus de cinq décennies sans surveillance dosimétrique. La présence systématique de descendants du radon (Bi-214, Pb-214) et d'émetteurs gamma énergétiques (TI-208 à 2614 keV) suggère que les travailleurs d'Ambatomaro sont exposés à une combinaison d'irradiation externe et d'exposition interne par inhalation. Bien que notre approche qualitative ne permette pas la quantification précise des doses, la comparaison avec des sites similaires documentés dans la littérature suggère que les expositions pourraient atteindre ou dépasser les seuils justifiant une surveillance radiologique systématique. Ces résultats constituent un indicateur critique pour les autorités sanitaires et les gestionnaires du site. Ils justifient impérativement la mise en œuvre d'un programme structuré de radioprotection incluant : surveillance dosimétrique individuelle, mesures environnementales de radon, amélioration de la ventilation, formation des travailleurs, et zonage radiologique du site.

Les perspectives de recherche incluent l'étalonnage en efficacité du système de détection pour la quantification absolue des activités, les simulations Monte Carlo pour l'estimation dosimétrique précise, et l'extension de la caractérisation aux matrices environnementales (eau, air, sols). Une étude épidémiologique de cohorte avec dosimétrie rétrospective permettrait de quantifier le risque sanitaire réel pour cette population professionnellement exposée. Au-delà du cas spécifique d'Ambatomaro, cette étude souligne la nécessité d'établir un cadre réglementaire national de radioprotection pour l'industrie extractive non-nucléaire à Madagascar, et démontre la faisabilité d'approches radiométriques avec des équipements accessibles dans des contextes à ressources limitées.

**REMERCIEMENTS :** Les auteurs remercient le personnel de la carrière d'Ambatomaro pour leur coopération lors de la phase d'échantillonnage, ainsi que le Laboratoire de Physique Nucléaire et de Physique de l'Environnement (LPNPE) de l'Université d'Antananarivo pour la mise à disposition des équipements de spectrométrie gamma.

**CONTRIBUTIONS DES AUTEURS :** LORAN : conception de l'étude, collecte et analyse des données, rédaction du manuscrit. LA : supervision méthodologique, analyse spectrale. FES, RRR : préparation des échantillons, acquisition des données. HNR : interprétation géochimique. AJFR : supervision générale, révision critique du manuscrit. Tous les auteurs ont approuvé la version finale.

**CONFLITS D'INTÉRÊTS :** Les auteurs déclarent n'avoir aucun conflit d'intérêts en relation avec cette étude.

**FINANCEMENT :** Cette étude a été réalisée sans financement externe spécifique.

## 6. RÉFÉRENCES

1. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources and effects of ionizing radiation: UNSCEAR 2000 report to the General Assembly, with scientific annexes. Volume I: Sources. New York: United Nations; 2000.
2. Alnour IA, Wagiran H, Ibrahim N, Laili Z, Omar M, Hamzah S, et al. Natural radioactivity measurements in the granite rock of quarry sites, Johor, Malaysia. *Radiat Phys Chem.* 2012;81(11):1842-7.
3. Veerasamy N, Murugan R, Kasar S, Inoue K, Kavasi N, Balakrishnan S, et al. Geochemical characterization of monazite sands based on rare earth elements, thorium and uranium from a natural high background radiation area in Tamil Nadu, India. *J Environ Radioact.* 2021;232:106565.
4. Oladejo OF, Olukotun SF, Rufai AB, Orosun MM, Akinwumi OE, Elegba SB, et al. Assessment of radiation hazards from natural radionuclide activity in quarry sites and surrounding soils in Osun State, Southwest Nigeria. *Sci Rep.* 2025;15:2239.
5. Tejado JJ, Guillén J, Baeza A. Assessment of occupational exposure in a granite quarry and processing factory. *J Radiol Prot.* 2016;36(3):641-52.
6. Grygorieva L, Tomilin Y. Doses from radon 222 irradiation for workers of the granite mining industry. *Probl Radiac Med Radiobiol.* 2017;22:97-107.
7. Smith T, Kearfott KJ. Practical considerations for gamma ray spectroscopy with NaI(Tl): a tutorial. *Health Phys.* 2018;114(1):94-106.
8. Lahham A, Al-Masri H, Judeh A. Study of environmental radioactivity in Palestine by in situ gamma-ray spectroscopy. *Radiat Prot Dosimetry.* 2009;135(1):43
9. International Atomic Energy Agency. Measurement of radionuclides in food and the environment: a guidebook. *Technical Reports Series* No. 295. Vienna: IAEA; 1989.



How to cite this article: Liane Otniela RANDRIAMIANDRASOA, Laza ANDRIAMPANARIVO, F. Elliot SAHOA, R. Radomanana RAKOTONARIVO, Haja Nirina RAVELOALISON et A. J. Franck RATOYONJANAHARY. ANALYSE QUALITATIVE PAR SPECTROMÉTRIE GAMMA DE L'URANIUM ET DU THORIUM DANS LES SÉDIMENTS PROVENANT DE LA CARRIÈRE DE GRANITE D'AMBATOMARO. *Am. J. innov. res. appl. sci.* 2025; 3(21): 11-20. DOI : 10.5281/zenodo.17252824

This is an Open Access article distributed in accordance with the Creative Commons Attribution Non Commercial (CC BY-NC 4.0) license, which permits others to distribute, remix, adapt, build upon this work non-commercially, and license their derivative works on different terms, provided the original work is properly cited and the use is non-commercial. See: <http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>