

ORIGINAL ARTICLE

ETUDE DE LA RADIOACTIVITE NATURELLE D'ORIGINE TELLURIQUE DU DISTRICT D'AMBILOBE, MADAGASCAR

STUDY OF THE NATURAL RADIOACTIVITY OF TELLURIC ORIGIN OF THE AMBILOBE DISTRICT, MADAGASCAR



| Jean Paul Stolerie ^{1*} | Martin Rasolonirina ² | Zafizara Donné ¹ | Briant Kall ¹ | et | Naivo Rabesiranana ² |

¹. Université d'Antsiranana | Faculté des Sciences | Département de Physique | Laboratoire de Métrologie Nucléaire et Environnement | BP 0 Antsiranana | Madagascar |

². Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires (INSTN-Madagascar) | Département Analyses et Techniques Nucléaires | BP 3907 Antananarivo | Madagascar |

| Received October 22, 2021 |

| Accepted October 27, 2021 |

| Published November 01, 2021 |

| ID Article | Stolerie-Ref3-ajira221021 |

RESUME

Contexte : La radioactivité d'origine tellurique est omniprésente dans l'environnement et contribue aux expositions radiologiques internes et externes du public. **Objectif :** Ce présent travail a pour objectif d'investiguer la radioactivité naturelle présente dans les sols du district d'Ambilobe. **Méthode :** Soixante-dix échantillons ont été collectés qui sont répartis dans cinq zones d'étude (Centre, Nord, Sud, Est et Ouest). Trois principaux radionucléides naturels ont été déterminés dans les sols de ces zones d'étude à savoirs le potassium-40, la famille de l'uranium-238 et la famille du thorium-232. Au laboratoire de l'INSTN-Madagascar, les échantillons ont été analysé à l'aide d'une chaîne de spectrométrie gamma, muni d'un détecteur NaI(Tl) de marque ORTEC et de modèle série 905-4. **Résultat :** Dans l'ensemble du site, les résultats obtenus montrent que les activités spécifiques du potassium-40 varient de (403 ± 162) Bq.kg⁻¹ à (837 ± 186) Bq.kg⁻¹ avec une moyenne de (578 ± 162) Bq.kg⁻¹. Celles de la famille d'uranium-238 fluctuent de (14 ± 6) Bq.kg⁻¹ à (23 ± 8) Bq.kg⁻¹ avec une moyenne de (18 ± 4) Bq.kg⁻¹. Pour la famille du thorium-232, les activités spécifiques sont comprises de (28 ± 13) Bq.kg⁻¹ à (48 ± 23) Bq.kg⁻¹ avec une moyenne de (40 ± 8) Bq.kg⁻¹. **Conclusion :** Pour chaque zone étudiée, les niveaux de la radioactivité de ces trois radionucléides naturels dans les sols du district d'Ambilobe varient d'un point à l'autre et ne sont pas uniformément répartis. Ces variations peuvent s'expliquer par l'interaction avec les formations géologiques et pédologiques de ces zones d'étude. Pour l'ensemble de ces résultats obtenus, les activités spécifiques des radionucléides naturels présents dans ces sols sont dominées par le potassium-40, suivie de la famille du thorium-232 ainsi que de la famille de l'uranium-238. Ainsi, les sols du district d'Ambilobe présentent un faible niveau de radioactivité, surtout pour le cas de la famille d'uranium-238 et celle du thorium-232.

Mots-clés : radioactivité naturelle, sol, district Ambilobe, spectrométrie gamma, activité spécifique.

ABSTRACT

Context: Telluric origin radioactivity is omnipresent in environment and contributes to the internal and external radiological exposures of the public. **Objective:** The objectives of present work are to measure qualitatively and quantitatively the natural radioactivity in soils of Ambilobe district. **Method:** In all, seventy soil samples were collected at different sites, distributed in five zones (Centre, North, South, East and West), to better understand the radioactivity levels in the study area. Three main natural radionuclides have been determined, i.e. potassium-40, uranium-238 and thorium-232 series. At the INSTN-Madagascar laboratory, the soil samples were measured by gamma spectrometry system with ORTEC NaI(Tl) detector, model 905-4 series. **Results:** Considering the site as a whole, the results obtained show that the potassium-40 activities vary from (403 ± 162) Bq.kg⁻¹ to (837 ± 186) Bq.kg⁻¹ with an average of (578 ± 162) Bq.kg⁻¹. For the uranium-238 series, the activities vary from (14 ± 6) Bq.kg⁻¹ to (23 ± 8) Bq.kg⁻¹ with an average of (18 ± 4) Bq.kg⁻¹. For the thorium-232 series, the activities vary from (28 ± 13) Bq.kg⁻¹ to (48 ± 23) Bq.kg⁻¹ with an average of (40 ± 8) Bq.kg⁻¹. **Conclusion:** For each area studied, the levels of radioactivity of these three naturally occurring radionuclides in soils in Ambilobe district vary from point to point and are not uniformly distributed. These variations can be explained by the interaction with the geological and pedological formations of these study areas. For all of these results obtained, the specific activities of natural radionuclides present in these soils are dominated by potassium-40, followed by the thorium-232 series as well as the uranium-238 series. Thus, the soils of the Ambilobe district show a low level of radioactivity, especially for the uranium-238 and thorium-232 series.

Keywords: Natural radioactivity, soil, Ambilobe district, gamma spectrometry system, Specific activity.

1. INTRODUCTION

La radioactivité naturelle est omniprésente dans l'environnement mais généralement à l'état de trace [1-4,6]. Certaines régions de Madagascar sont réputées avoir des taux élevés de radioactivité [1,2,4]. De ce fait, les populations dans ces régions sont exposées en permanence aux rayonnements ionisants émis par les radionucléides présents dans la croûte terrestre [3,4,5].

Les habitants de district d'Ambilobe exploitent beaucoup les terres en travaillant toute la journée à la culture, à la recherche de pierres précieuses et à l'embarquement des sables. Ils sont exposés depuis toujours à la radioactivité naturelle. Néanmoins, une exposition trop intense ou supérieure à la valeur normale permise peut avoir des conséquences néfastes sur l'individu. Elle peut provoquer divers effets, comme la brûlure, la cécité, le cancer et même

la mort. La radioactivité constitue donc bien un danger pour l'homme qu'il ne faut pas négliger [4,6,7]. Il est alors nécessaire de se protéger et de protéger les personnes travaillant quotidiennement au contact de la radioactivité. Ces éléments responsables de la radioactivité mesurée dans la croûte terrestre sont essentiellement l'uranium-238, le thorium-232 ainsi que leurs descendants et le potassium-40 [4,8]. La distribution de l'activité de ces radionucléides dépend de l'aspect géologique et géochimique du milieu.

Vis-à-vis des différentes activités économiques dans le district d'Ambilobe telles que la sucrerie SIRAMA, la carrière de pierres précieuses à BETSIAKA, le transport de sable pour la construction, il est alors nécessaire d'investiguer le niveau de la radioactivité naturelle dans ce district et d'évaluer ses impacts radiologiques sur la santé des habitants. L'étude de radioactivité dans ce site consiste à établir l'état zéro, par l'évaluation des principaux radionucléides naturels dans les sols de ce district.

2. MATERIELS ET METHODES

2.1 Description des sites d'étude

Les prélèvements des échantillons des sols ont été faits sur les 16 communes du district d'Ambilobe de la région DIANA, situé dans la partie nord de Madagascar. Ces communes sont distantes de 20 à 70 km environ par rapport à la ville d'Ambilobe. Les coordonnées géographiques sont comprises entre la latitude $12^{\circ} 44' - 14^{\circ} 21'$ Sud et la longitude $48^{\circ} 34' - 49^{\circ} 27'$ Est, soit 1315000 m - 1480000 m de latitude et 615000 m - 731000 m de longitude en projection Laborde (Figure 2). Le présent site d'étude est réparti en cinq (05) zones, à savoir la zone centre (ZC), la zone nord (ZN), la zone sud (ZS), la zone est (ZE) et la zone ouest (ZO). La Figure 1a et le Tableau 1 représente la répartition de ces communes par zone d'étude.

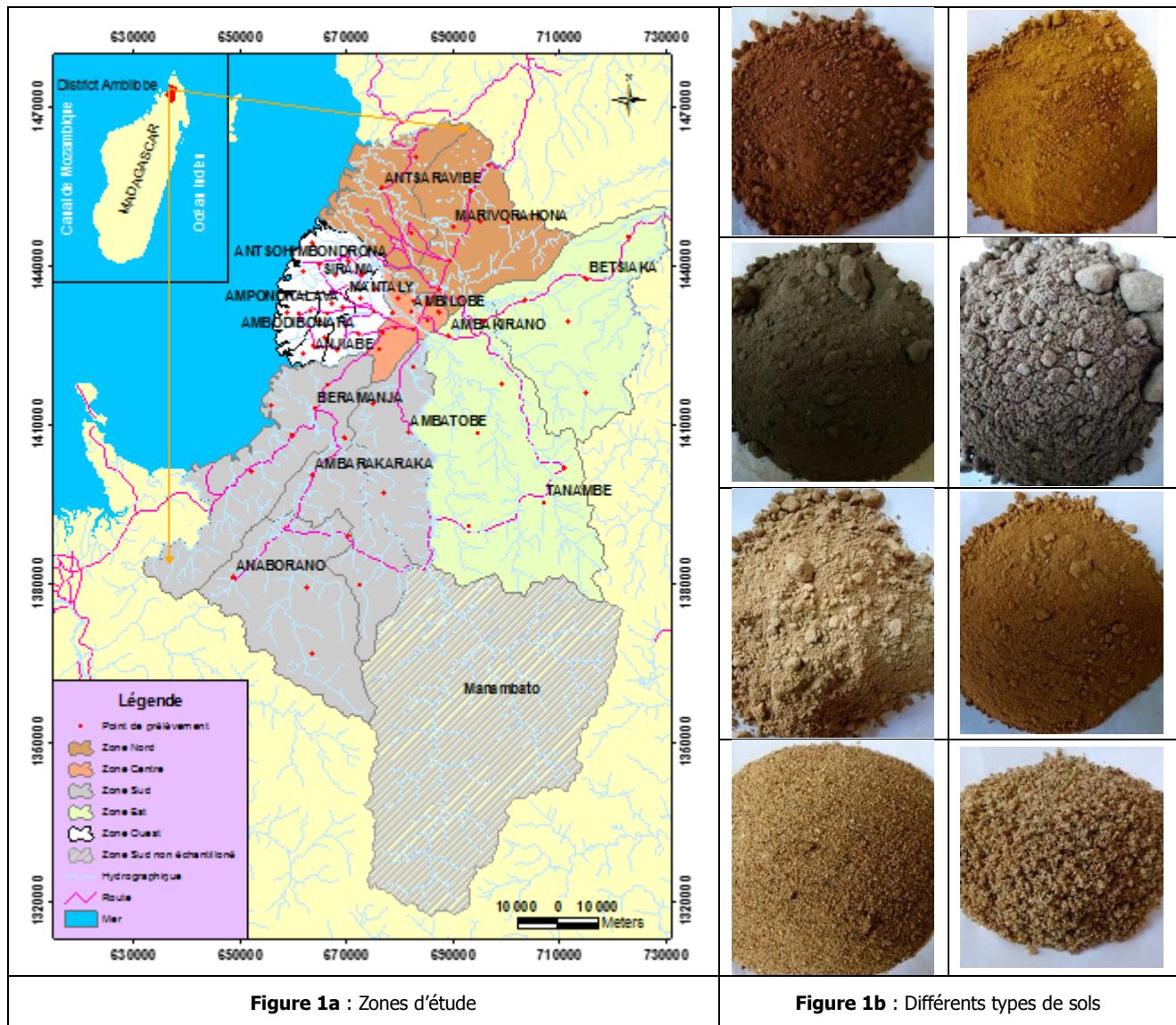


Figure 1 : Localisation des points de prélèvements des échantillons et texture des sols

2.2 Prélèvement et préparation des échantillons

Les travaux de terrain ont été effectués entre le mois de juillet et décembre 2017. Les points de prélèvements ont été repérés à l'aide d'un GPS de marque Etrex Garmin et présentés sur la Figure 1a. Les campagnes de prélèvements ont permis de collecter 70 échantillons de sols. Les caractéristiques des sols prélevés et leurs textures sont montrés à la Figure 1b et résumées dans le Tableau 1. La quantité d'un échantillon prélevé est d'environ 300 g, pris jusqu'à 30 cm de profondeur à l'aide d'une bêche. Les échantillons collectés ont été ensuite mis dans des sachets en plastique, étiquetés et scellés pour éviter toute sorte de contamination.

Tableau 1 : Caractéristique et texture du sol dans les différentes zones d'études

Site	Localité	Nombre d'échantillon	Type de sols
Zone Nord	Marivorahona	7	- Ferralitiques sur basalte
	Antsaravibe	3	- Sols squelettique sur calcaire de l'Ankarana, alluviaux argilo-limoneux, limon-sableux
Zone Sud	Beramanja	6	- Ferralitique - Alluviaux argilo-limoneux d'origine basaltique, sable fin
	Ambarakaraka	3	- Argilo-sableux, sols alluviaux sableux fin plus argilo-limoneux, sols squelettiques sur schiste
	Anaborano Ifasy	3	- Sols alluviaux sableux fin plus argilo-limoneux, sols squelettiques sur schiste
Zone centre	Ambatoben'Anjavvy	4	- Sols minéraux bruts : argilo-limoneux, squelettique sur marne et calcaires
	Ambilobe ville	10	- Sols ferralitiques
	Grève de Mahavavy	1	- Sableux
Zone Est	Ambakirano	3	- Sols ferrugineux à concrétion, sableux fin
	Betsiaka	5	- Sols ferralitique, argilo-limoneux
	Tanambe	4	- Sols squelettiques sur schistes
Zone Ouest	Mantaly	5	- Sols jaunes de pédiplaine, limono-sableux, argilo-limoneux
	Sirama	3	- Sols argilo-limoneux, limono-sableux
	Antsohimbodrona	3	- Limono-sableux, sableux fin, argilo-limoneux
	Ampondralava	4	- Sols argilo-limoneux, sableux fin, limono-sableux
	Ambodibonara	3	- Sols argilo-limoneux, sableux fin
	Anjiabe	3	- Sols argilo-limoneux, sableux fin

Les échantillons des sols ont été préparés physiquement au Département Analyses et Techniques Nucléaires de l'INSTN-Madagascar. Ces échantillons ont été étuvés à 80°C pour éliminer l'humidité, broyés à l'aide d'un mortier à pilon pour les rendre homogènes et tamisés à travers une maille de 2 mm. Ils ont été mis dans des porte-échantillons cylindriques en polyéthylène de 100 cm³, scellés hermétiquement et stockés pendant trois semaines pour atteindre l'équilibre séculaire entre le radium-226 et ses descendants.

2.3. Chaîne de spectrométrie gamma

La chaîne de spectrométrie gamma permet de mesurer qualitativement et quantitativement les radionucléides émetteurs gamma. Elle est composée d'un détecteur, d'un préamplificateur, d'un analyseur multicanaux (MCA) et d'un logiciel de traitement ScintiVision. La Figure 2 montre le dispositif concernant la chaîne de spectrométrie gamma utilisée au Département Analyses et Techniques Nucléaires.

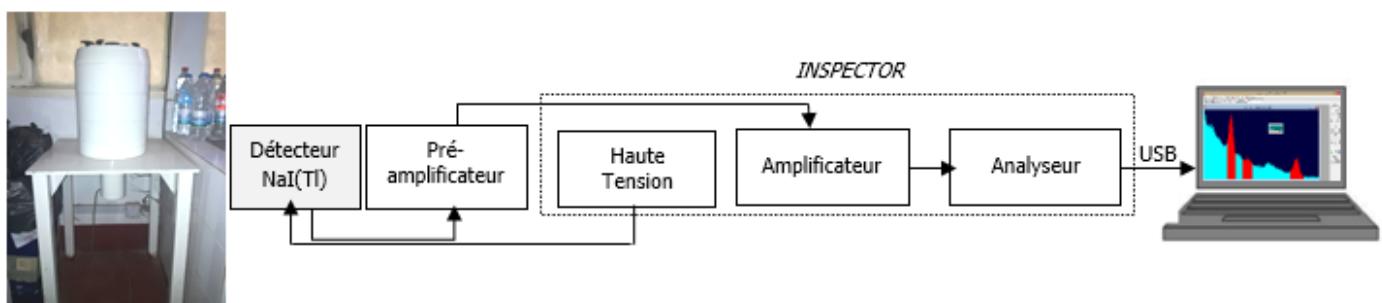


Figure 2 : Dispositif de la chaîne de comptage au détecteur NaI(Tl) de l'INSTN-Madagascar.

2.3. Matériaux de référence

Les matériaux de référence certifiés servent à étalonner la chaîne de mesure avant de procéder à l'analyse des échantillons. Dans ce travail, nous avons utilisé les RGK-1, RGU-1 et RGTh-1 contenant respectivement du potassium, de la famille de l'uranium et celle du thorium. Leurs caractéristiques sont données dans le Tableau 2.

Tableau 2 : Caractéristiques des matériaux de référence RGK-1, RGU-1 et RGTh-1 disposés par le département Analyses et Techniques Nucléaires à l'INSTN-Madagascar

Matériaux de référence	RGK-1	RGU-1	RGTh-1	
Volume	100 cm ³	100 cm ³	100 cm ³	
Masse	114,03 ± 0,02 (g)	142,85 ± 0,03 (g)	135,04 ± 0,04 (g)	
Teneur	K U Th	448000 ± 3000 (μg.g ⁻¹) < 0,001 (μg.g ⁻¹) < 0,01 (μg.g ⁻¹)	< 20 (μg.g ⁻¹) 400 ± 2 (μg.g ⁻¹) < 1 (μg.g ⁻¹)	0,02 ± 0,01% 6,3 ± 0,4 (μg.g ⁻¹) 800 ± 16 (μg.g ⁻¹)
Nature	Sulfate de potassium extra pur	Minerai d'Uranium dilué avec de la Silice	Minerai de Thorium dilué avec de la Silice	

K : Potassium; **U** : Uranium; **Th** : Thorium.

Les matériaux de référence RGK-1 et RGU-1 sont respectivement composés de potassium et d'uranium presque purs. En effet, la présence du thorium et du potassium dans le RGU-1 ainsi que celle du thorium et de l'uranium dans le RGK-1 peuvent être négligées. Par contre, celle de l'uranium dans le RGTh-1 ne peut pas être omise.

2.4. Etalonnage de la chaîne de mesure

2.4.1. Etalonnage de l'énergie

L'etalonnage en énergie sert à déterminer la relation entre le numéro de canal et l'énergie. Cette relation est une droite d'équation sous forme $y = ax + b$, où y est l'énergie en keV, x est le numéro de canal et a , b sont les constantes à déterminer. Le numéro du canal est déterminé sur le centre d'un pic photoélectrique. Pour ce faire, il est nécessaire d'utiliser des sources certifiées, en termes de radionucléides ainsi que leurs concentrations. Cet étalonnage nécessite donc plusieurs pics gamma caractéristiques afin d'avoir de bon lissage de la courbe. Comme le détecteur NaI(Tl) a une basse résolution en énergie, quelques pics gamma des radionucléides naturels peuvent être exploités. Quatre pics photoélectriques ont été utilisés pour l'étalonnage : le plomb-214 (352 keV), le potassium-40 (1461 keV), le bismuth-214 (1764,5 keV) et le thallium-208 (2614,5 keV). Ces pics sont choisis car ils sont relativement isolés et ne présentent pas d'interférence avec les autres pics photoélectriques dans le spectre. Dans ce travail, on obtient la droite d'étalonnage en énergie suivante :

$$E = 3,88C - 39,25 \quad (1)$$

Avec E est l'énergie en keV et C est le numéro de canal d'accumulation maximum de coups.

2.4.2. Etalonnage en efficacité

L'étalement en efficacité utilise la méthode développée par Rybach. Cette méthode suggère que la largeur des régions d'intérêt devrait être égale à 10% de l'énergie du radionucléide. Cependant, une région d'intérêt légèrement plus large de 15% a été prise en considération pour récupérer la totalité de la surface du pic photoélectrique [19].

- Taux de comptage**

Le taux de comptage net $R_{i,j}$ est proportionnel aux activités $A_{k,j}$. Les indices i (1 à 3), j (1 à 3) et k (1 à 3) correspondent respectivement aux régions d'intérêt, étalons et radionucléides. On a :

$$R_{i,j} = \sum_{k=1}^3 \varepsilon_{i,k} A_{k,j} \quad (2)$$

Où $A_{k,j}$ étant l'activité du nucléide k dans la $j^{\text{ème}}$ source étalon ;

$\varepsilon_{i,k}$ la constante d'étalement dans la $j^{\text{ème}}$ région d'intérêt pour le radionucléide k ;

$R_{i,j}$ le taux de comptage net pour la $j^{\text{ème}}$ région d'intérêt du $j^{\text{ème}}$ source étalon, qui est donné par l'équation (3) :

$$R_{i,j} = \frac{N_{i,j}}{t_j} - Rb_i \quad (3)$$

Où $N_{i,j}$ est l'Aire de pic enregistré par le détecteur ;

t_j la durée de comptage exprimé en seconde ;

Rb_i le taux de comptage du bruit de fond dans la $j^{\text{ème}}$ région d'intérêt.

Les taux de comptage nets de région d'intérêt ajustée à 15% autour des pics d'énergie 1461keV, 1765keV et 2614keV sont obtenus en mesurant séparément les sources étalons RGK-1, RGU-1 et RGTh-1.

- Constante d'efficacité**

Les constantes d'efficacité sont déterminées à partir des activités des matériaux de référence et des taux de comptage des régions d'intérêt. Ainsi, on a [8] :

Pour le RGK-1:
$$e_{1,1} = \frac{R_{1,1}}{A_{1,1}} \quad (4)$$

Pour le RGU-1:
$$e_{1,2} = \frac{R_{1,2}}{A_{2,2}} \quad \text{et} \quad e_{2,2} = \frac{R_{2,2}}{A_{2,2}} \quad (5)$$

Pour le RGTh-1 :
$$e_{1,3} = \frac{R_{1,3} - \frac{R_{1,2}}{A_{2,2}} \times A_{2,3}}{A_{3,3}} \quad \text{et} \quad e_{2,3} = \frac{R_{2,3} - \frac{R_{2,2}}{A_{2,2}} \times A_{2,3}}{A_{3,3}} \quad (6)$$

Les autres constantes d'efficacités peuvent être déterminées en combinant les taux de comptage d'uranium et de thorium dans la troisième région d'intérêt. Alors, on a ainsi :

$$e_{3,2} = \frac{R_{3,2}}{A_{2,2}} \quad \text{et} \quad e_{3,3} = \frac{R_{3,3} - \frac{R_{3,2}}{A_{2,2}} \times A_{2,3}}{A_{3,3}} \quad (7)$$

2.5. Calcul des activités spécifiques des radionucléides naturels dans les échantillons

En se référant à l'équation (2), on obtient ainsi la forme matricielle suivante [5] :

$$\begin{pmatrix} R_K \\ R_U \\ R_{Th} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} e_{1,1} & e_{1,2} & e_{1,3} \\ 0 & e_{2,2} & e_{2,3} \\ 0 & e_{3,2} & e_{3,3} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} A_K \\ A_U \\ A_{Th} \end{pmatrix} \quad (8)$$

Avec $\begin{pmatrix} R_K \\ R_U \\ R_{Th} \end{pmatrix}$ et $\begin{pmatrix} A_K \\ A_U \\ A_{Th} \end{pmatrix}$ étant des matrices (3x1) respectivement les taux de comptage nets et les activités spécifiques des radionucléides naturels présents dans les échantillons des sols.

Les activités spécifiques de ces trois principaux radionucléides naturels peuvent être calculées en inversant la matrice dans l'équation (8), alors, il vient :

$$\begin{pmatrix} A_K \\ A_U \\ A_{Th} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a_{1,1} & a_{1,2} & a_{1,3} \\ 0 & a_{2,2} & a_{2,3} \\ 0 & a_{3,2} & a_{3,3} \end{pmatrix} \times \begin{pmatrix} R_K \\ R_U \\ R_{Th} \end{pmatrix} \quad (9)$$

Par conséquent, les activités spécifiques sont finalement déterminées à partir de l'équation (10).

$$\begin{cases} A_K = a_{1,1}R_K + a_{1,2}R_U + a_{1,3}R_{Th} \\ A_U = +a_{2,2}R_U + a_{2,3}R_{Th} \\ A_{Th} = +a_{3,2}R_U + a_{3,3}R_{Th} \end{cases} \quad (10)$$

Avec A_K , A_U et A_{Th} représentent les activités spécifiques et R_K , R_U et R_{Th} les taux de comptage nets enregistrés.

2.6. Analyse des échantillons de sols

Les échantillons ont été analysés l'un après l'autre pendant 24 heures pour que les comptages statistiques de chaque pic gamma exploité soient suffisants (supérieur à 10000 coups). Les spectres sauvegardés sont ensuite traités à l'aide du logiciel Scintivision. Les valeurs de l'activité spécifique sont accompagnées d'incertitudes de mesure. Pour la valeur moyenne de l'activité, l'incertitude est représentée par l'écart-type.

3. RESULTATS

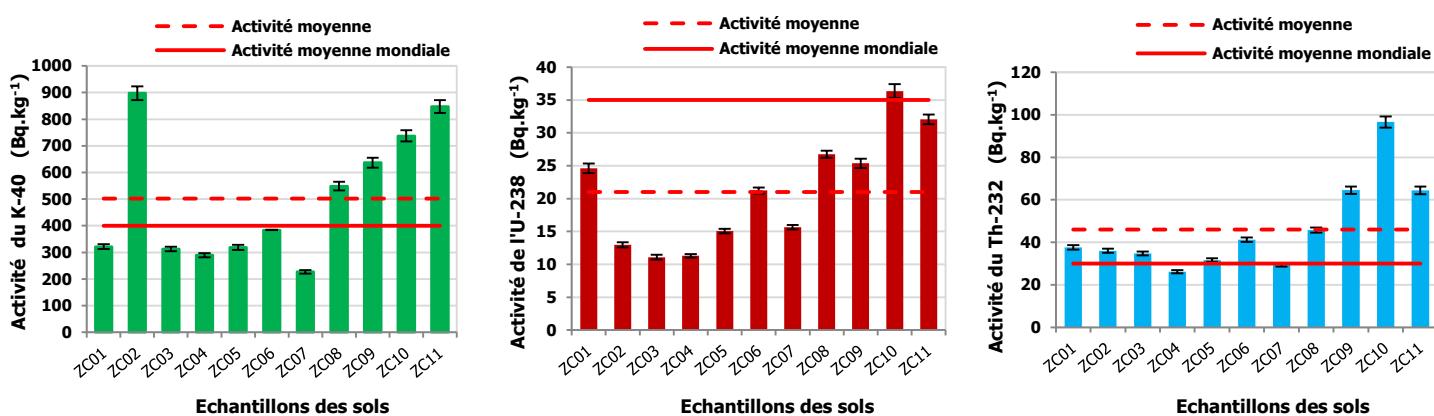
3.1. Activités spécifiques des radionucléides naturels dans la zone Centre

D'après les résultats dans le Tableau 6 et sur la Figure 3, on constate que le potassium-40, la famille de l'uranium-238 et celle du thorium-232 ont été détectés dans les sols de la ville d'Ambilobe.

Tableau 6 : Activités spécifiques des trois radionucléides naturels dans la ville d'Ambilobe

Code d'échantillon	Activités spécifiques ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$)		
	Potassium-40	Uranium-238	Thorium-232
ZC01	322 \pm 9	25 \pm 1	38 \pm 1
ZC02	898 \pm 26	13 \pm 0,4	36 \pm 1
ZC03	313 \pm 9	11 \pm 0,4	35 \pm 1
ZC04	290 \pm 8	11 \pm 0,3	26 \pm 1
ZC05	319 \pm 10	15 \pm 0,3	32 \pm 1
ZC06	384 \pm 1	21 \pm 0,5	41 \pm 1
ZC07	227 \pm 6	16 \pm 0,3	29 \pm 1
ZC08	549 \pm 16	27 \pm 1	46 \pm 1
ZC09	637 \pm 18	25 \pm 1	65 \pm 2
ZC10	737 \pm 21	36 \pm 1	97 \pm 3
ZC11	848 \pm 24	32 \pm 1	64 \pm 2
Moyenne $\pm \sigma$	502 \pm 243	21 \pm 9	46 \pm 21
[Min – Max]	[227 – 898]	[11 – 36]	[26 – 97]
Moyenne mondiale	400	35	30

ZC : Zone Centre ; σ : écart-type.

**Figure 3 :** Activités spécifiques du K-40, de la famille de l'U-238 et celle du Th-232 dans la zone Centre.

Parmi les onze échantillons de sols collectés, cinq ont des activités spécifiques du potassium-40 supérieures à la moyenne mondiale de $400 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ et neuf présentent des activités spécifiques de la famille du thorium-232 plus élevées que la moyenne mondiale de $30 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$. Quant à la famille de l'uranium-238, seulement un échantillon a une activité spécifique qui dépasse la moyenne mondiale de $35 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$. En moyenne, l'activité spécifique du potassium-40 observée dans les sols de la zone Centre a été plus importante, suivie de l'activité de la famille du thorium-232 et celle de l'uranium-238.

3.2. Activités spécifiques des radionucléides naturels dans la zone Nord

Les résultats dans le Tableau 7 et sur la Figure 4 montrent que le potassium-40, la famille de l'uranium-238 et celle du thorium-232 ont été quantifiés dans les sols de Marivorahona et d'Antsaravibe.

Tableau 7 : Activités spécifiques des trois radionucléides naturels dans la zone Nord

Code d'échantillon	Activités spécifiques ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$)		
	Potassium-40	Uranium-238	Thorium-232
ZN01	129 \pm 4	15 \pm 1	79 \pm 2
ZN02	267 \pm 8	14 \pm 0,4	34 \pm 1
ZN03	311 \pm 9	16 \pm 0,2	20 \pm 1
ZN04	453 \pm 13	17 \pm 1	51 \pm 1
ZN05	512 \pm 15	11 \pm 0,3	24 \pm 1
ZN06	510 \pm 15	11 \pm 0,4	27 \pm 1
ZN07	294 \pm 8	8 \pm 0,3	28 \pm 1
ZN08	687 \pm 20	15 \pm 0,2	18 \pm 1
ZN09	346 \pm 10	12 \pm 0,3	28 \pm 1
ZN10	516 \pm 15	18 \pm 0,4	34 \pm 1
Moyenne $\pm \sigma$	403 \pm 162	14 \pm 3	34 \pm 18
[Min – Max]	[129 – 687]	[8 – 18]	[18 – 79]
Moyenne mondiale	400	35	30

ZN : Zone Nord ; σ : écart-type.

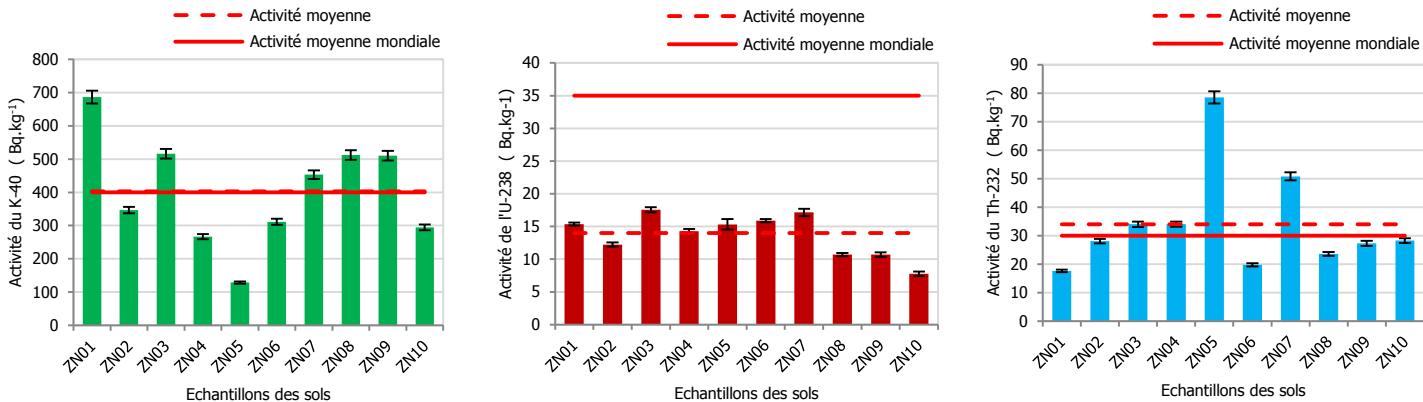


Figure 4 : Activités spécifiques du K-40, de la famille de l'U-238 et celle du Th-232 dans la zone nord

Parmi dix échantillons, on remarque que cinq échantillons ont des activités spécifiques du potassium-40 supérieures à $400 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ et deux échantillons ont des activités du thorium-232 plus élevées que $30 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$. Par contre, tous les échantillons prélevés dans cette zone ont des activités spécifiques de la famille de l'uranium-238 inférieures à la moyenne mondiale de $35 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$. On observe également que les activités spécifiques du potassium-40 ont été constatées plus importantes par rapport aux activités spécifiques de la famille du thorium-232 et celles de la famille de l'uranium-238.

3.3. Activités spécifiques des radionucléides naturels dans la zone Sud

Le Tableau 8 et la Figure 5 montrent que le potassium-40, les familles de l'uranium-238 et du thorium-232 ont été détectés dans les sols de la zone Sud.

Tableau 8 : Activités spécifiques des trois radionucléides dans la zone Sud

Code d'échantillon	Activités spécifiques ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$)		
	Potassium-40	Uranium-238	Thorium-232
ZS01	989 ± 28	39 ± 1	65 ± 2
ZS02	832 ± 24	$15 \pm 0,4$	30 ± 1
ZS03	979 ± 28	28 ± 1	66 ± 2
ZS04	967 ± 28	$24 \pm 0,4$	37 ± 1
ZS05	625 ± 18	15 ± 1	32 ± 1
ZS06	503 ± 14	$13 \pm 0,4$	37 ± 1
ZS07	723 ± 21	$16 \pm 0,3$	29 ± 1
ZS08	520 ± 15	$16 \pm 0,3$	25 ± 1
ZS09	226 ± 6	$17 \pm 0,3$	29 ± 1
ZS10	213 ± 6	27 ± 1	55 ± 1
ZS11	781 ± 22	$10 \pm 0,3$	26 ± 1
ZS12	602 ± 17	26 ± 1	45 ± 1
ZS13	254 ± 7	$16 \pm 0,3$	30 ± 1
ZS14	222 ± 6	25 ± 1	83 ± 2
ZS15	537 ± 15	$16 \pm 0,3$	34 ± 1
ZS16	530 ± 15	$14 \pm 0,5$	41 ± 1
Moyenne $\pm \sigma$	594 ± 272	20 ± 8	42 ± 17
[Min – Max]	[213 – 989]	[10 – 39]	[25 – 83]
Moyenne mondiale	400	35	30

ZS : Zone Sud ;

σ : écart-type

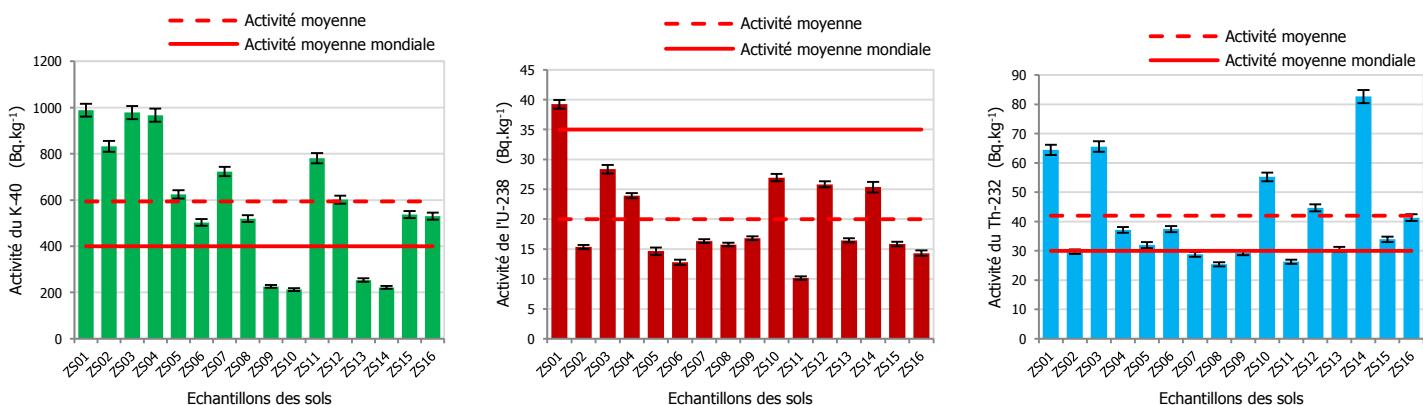


Figure 5 : Activités spécifiques du K-40, de la famille de l'U-238 et celle du Th-232 dans la zone Sud

Par rapport à la moyenne mondiale de $400 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ du potassium-40, 75% d'échantillons des sols prélevés dépassent cette moyenne. Tandis que 19% d'échantillons de sols collectés ont des activités supérieures à la moyenne mondiale de $30 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$ pour la famille du thorium-232. Pour ce qui est de la famille de l'uranium-238, ses activités sont généralement inférieures à la moyenne mondiale de $35 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$. On remarque également que les activités spécifiques du potassium-40 sont plus élevées que celles de la famille du thorium-232 et de l'uranium-238.

3.4. Activités spécifiques des radionucléides naturels dans la zone Est

Les résultats dans le Tableau 9 et sur la Figure 6 montrent que le potassium-40, la famille de l'uranium-238 et celle du thorium-232 sont quantifiés dans les sols de la zone Est.

Tableau 9 : Activités spécifiques des trois radionucléides naturels dans la zone Est

Code d'échantillon	Activités spécifiques ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$)		
	Potassium-40	Uranium-238	Thorium-232
ZE01	279 ± 8	24 ± 1	74 ± 2
ZE02	526 ± 15	$11 \pm 0,3$	23 ± 1
ZE03	741 ± 21	30 ± 1	59 ± 2
ZE04	488 ± 14	25 ± 1	70 ± 2
ZE05	207 ± 6	$17 \pm 0,3$	24 ± 1
ZE06	1196 ± 34	17 ± 1	47 ± 1
ZE07	772 ± 22	$13 \pm 0,2$	21 ± 1
ZE08	854 ± 24	$13 \pm 0,2$	21 ± 1
ZE09	560 ± 16	32 ± 1	61 ± 2
ZE10	332 ± 9	25 ± 1	49 ± 1
ZE11	308 ± 9	34 ± 1	43 ± 1
ZE12	365 ± 10	30 ± 1	87 ± 2
Moyenne $\pm \sigma$	552 ± 291	23 ± 8	48 ± 23
[Min – Max]	[207 – 1196]	[11 – 34]	[21 – 87]
Moyenne mondiale	400	35	30

ZE : Zone Est ;

σ : écart-type

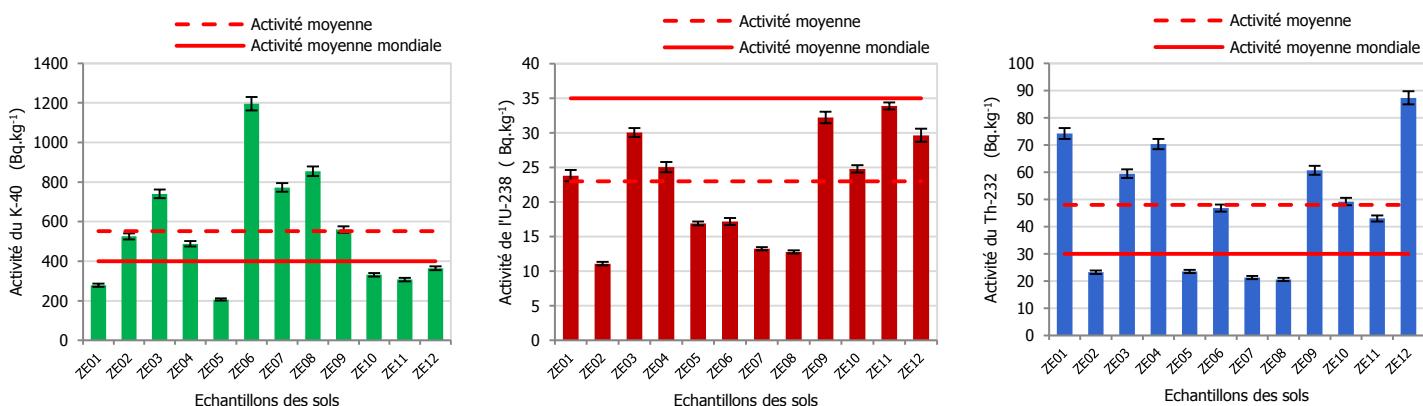


Figure 6 : Activités spécifiques du K-40, de la famille de l'U-238 et celle du Th-232 dans la zone Est

Ces résultats révèlent que les activités spécifiques de ces trois radionucléides fluctuent d'un point à l'autre. Parmi douze échantillons des sols collectés, sept ont des activités spécifiques du potassium-40 plus élevées que la moyenne mondiale de $400 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$, dix ont des activités spécifiques de la famille du thorium-232 plus importantes que la moyenne mondiale de $30 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$. Par contre, toutes les activités spécifiques de la famille de l'uranium-238 dans les échantillons des sols prélevés dans cette zone d'étude sont inférieures à la moyenne mondiale de $35 \text{ Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$. Dans la zone Est, on constate que les activités spécifiques du potassium-40 sont remarquablement dominantes, suivies des activités spécifiques de la famille du thorium-232 et celles de la famille de l'uranium-238.

3.4. Activités spécifiques des radionucléides naturels dans la zone Ouest

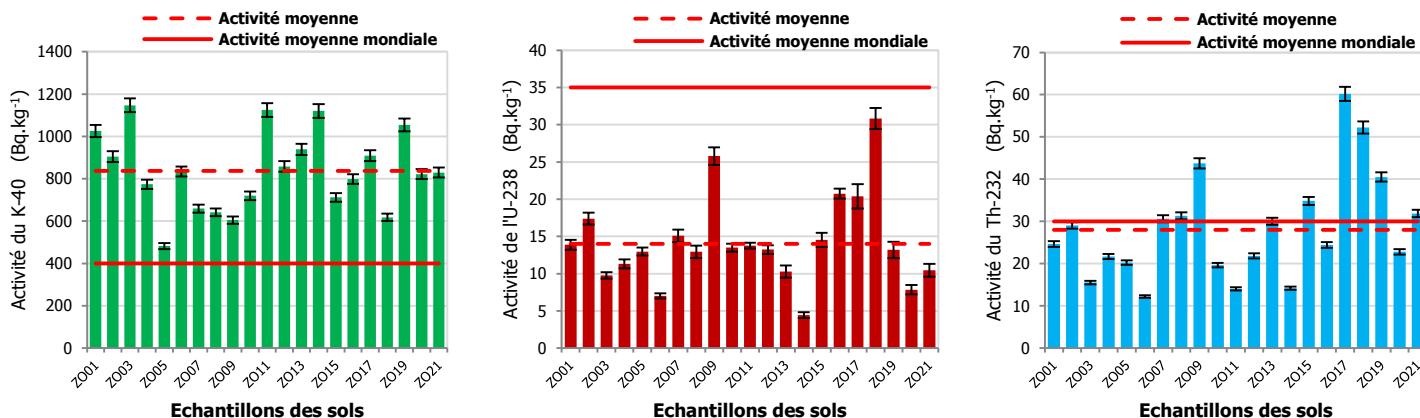
Les résultats dans le Tableau 10 et sur la Figure 7 révèlent que le potassium-40, la famille de l'uranium-238 et celle du thorium-232 ont été détectés dans les échantillons des sols de la zone Ouest.

Tableau 10 : Activités spécifiques des trois radionucléides naturels dans la zone Ouest

Code de l'échantillon	Activités spécifiques (Bq.kg ⁻¹)		
	Potassium-40	Uranium-238	Thorium-232
Z001	1025 ± 29	14 ± 0,3	25 ± 1
Z002	905 ± 26	17 ± 0,3	29 ± 1
Z003	1147 ± 33	10 ± 0,2	16 ± 0,4
Z004	774 ± 22	11 ± 0,2	22 ± 1
Z005	482 ± 14	13 ± 0,2	20 ± 1
Z006	834 ± 24	7 ± 0,1	12 ± 0,3
Z007	659 ± 19	15 ± 0,2	31 ± 1
Z008	642 ± 18	13 ± 0,2	31 ± 1
Z009	604 ± 17	26 ± 0,5	44 ± 1
Z010	719 ± 21	13 ± 0,2	20 ± 1
Z011	1125 ± 32	14 ± 0,2	14 ± 0,4
Z012	858 ± 25	13 ± 0,2	22 ± 1
Z013	939 ± 27	10 ± 0,3	30 ± 1
Z014	1120 ± 32	4 ± 0,2	14 ± 0,4
Z015	712 ± 20	15 ± 0,4	35 ± 1
Z016	799 ± 23	21 ± 0,3	24 ± 1
Z017	909 ± 26	20 ± 1	60 ± 2
Z018	618 ± 18	31 ± 1	52 ± 1
Z019	1054 ± 30	13 ± 0,4	41 ± 1
Z020	821 ± 23	8 ± 0,2	23 ± 1
Z021	829 ± 24	10 ± 0,3	32 ± 1
Moyenne ±σ	837 ± 186	14 ± 6	28 ± 13
[Min – Max]	[482 – 1147]	[4 – 31]	[12 – 60]
Moyenne mondiale	400	35	30

ZO : Zone Ouest ;

σ : écart-type

**Figure 7 :** Activités spécifiques du K-40, de la famille de l'U-238 et celle du Th-232 dans la zone Ouest

Toutes les activités spécifiques du potassium-40 sont supérieures à la moyenne mondiale de 400 Bq.kg⁻¹. Tandis que pour le cas de la famille de l'uranium-238, toutes ses activités spécifiques sont inférieures à la moyenne mondiale de 35 Bq.kg⁻¹. Quant à la famille du thorium-232, huit échantillons parmi onze ont des activités spécifiques plus élevées que la moyenne mondiale de 30 Bq.kg⁻¹. On remarque aussi que les activités spécifiques du potassium-40 observées ont été plus importantes par rapport aux activités spécifiques de la famille du thorium-232 ainsi qu'à celles de la famille de l'uranium-238.

3.5. Corrélations entre les activités des trois radionucléides naturels

D'après la Figure 8, seuls les points de nuage formés par les activités des familles de l'uranium-238 et du thorium-232 sont proches de la droite d'ajustement. Cela implique qu'il y a une corrélation entre les activités de la famille de l'uranium-238 et celles de la famille du thorium-232 ($R^2 = 0,60$).

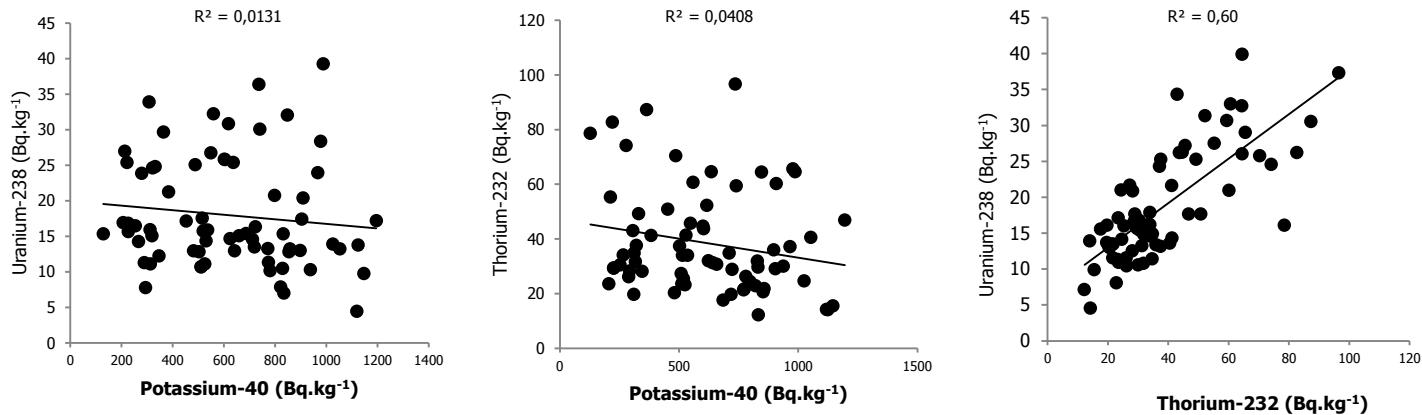


Figure 8 : Corrélation entre les activités du K-40, de la famille de l'U-238 et celle du Th-232 dans les sols.

Quant aux relations entre les activités du potassium-40 et de la famille de l'uranium-238 ainsi que celles du potassium-40 et de la famille du thorium-232, on constate que leurs coefficients de corrélation, respectivement ($R^2 = 0,013$) et ($R^2 = 0,041$), sont faibles et les nuages de points s'éloignent de la droite d'ajustement. Cela signifie qu'il n'existe pas de relation pertinente entre ces activités dans les sols du district d'Ambilobe.

4. DISCUSSION

Les résultats obtenus révèlent que le potassium-40, la famille de l'uranium-238 et la famille du thorium-232 ont été quantifiés dans les sols du district d'Ambilobe dans le Nord de Madagascar. Ces résultats montrent que les activités de ces trois radionucléides naturels fluctuent d'une zone à l'autre.

En comparant les activités moyennes trouvées dans les cinq zones étudiées avec les moyennes mondiales, on constate que :

- Potassium-40 :

Les activités moyennes dans la zone Nord sont comparables à la valeur de la moyenne mondiale de 400 Bq.kg^{-1} . Mais, les moyennes trouvées dans la zone Centre, zone Est et zone Sud sont légèrement supérieures à la moyenne mondiale. Celle estimée dans la zone Ouest est deux fois plus importante que la moyenne mondiale.

- Famille de l'uranium-238 :

Les moyennes des activités de la zone Centre, zone Est et zone Sud sont légèrement inférieures à la moyenne mondiale de 35 Bq.kg^{-1} . Par ailleurs, les moyennes dans les sols de la zone Nord et zone Ouest sont moitié plus faibles que la moyenne mondiale.

- Famille du thorium-232 :

Les activités moyennes de la zone Centre, zone Nord, zone Sud et zone Est sont légèrement supérieures à la moyenne mondiale de 30 Bq.kg^{-1} . Cependant, l'activité moyenne de la zone Ouest est légèrement faible devant la moyenne mondiale.

On remarque aussi que, pour l'ensemble des résultats obtenus, les activités spécifiques des radionucléides naturels dans les sols du district d'Ambilobe sont dominées par le potassium-40, suivie de la famille du thorium-232 ainsi que la famille de l'uranium-238.

D'une manière générale, les radionucléides naturels tels que le potassium-40, la famille de l'uranium-238 et la famille du thorium-232 ne sont pas uniformément repartis dans les sols du district d'Ambilobe. Cela est dû aux structures géologiques du site d'étude et aussi aux caractéristiques pédologiques du sol de ces différentes zones d'étude.

- Zonage :

Les travaux de J. Vieillefon et P. Bourgeat nous ont fourni les renseignements sur la pédologie du district d'Ambilobe [9].

Dans les trois zones (centre, est et sud), les comportements de ces trois radionucléides sont relativement identiques. Les activités moyennes de l'uranium-238 sont en-dessous de celle moyenne mondiale de 35 Bq.kg^{-1} . Tandis que les activités moyennes du potassium-40 et de la famille du thorium-232 sont supérieures aux celles moyennes mondiales de 400 Bq.kg^{-1} et 30 Bq.kg^{-1} respectivement. Les sols sont généralement argilo-sableux de $\text{pH} < 6$ [24]. Ce type de sol contient une concentration relativement élevée de potassium. En ce qui concerne les deux autres radionucléides, ces types de sol mobilisent d'avantage l'uranium par rapport au thorium. Ceux-ci expliquent la légère augmentation de l'activité du thorium-232.

Dans la zone nord, les trois radionucléides mesurés présentent des niveaux normaux de la radioactivité. Pour le potassium-40 et la famille du thorium-232, les activités moyennes trouvées sont relativement identiques à celles

moyennes mondiales. Pour la famille de l'uranium-238, l'activité moyenne trouvée est deux fois moins de celle moyenne mondiale. Les sols sont peu profonds et très caillouteux de pH compris entre 6 à 6,9. Les bas-fonds ont des aspects limono-sableux et squelettiques [24]. Ce dernier est fortement acide dans tout le profil. Ces types de sol s'expliquent les niveaux de radioactivité du milieu.

Dans la zone ouest, les familles de l'uranium-238 et du thorium-232 présentent des niveaux faibles par rapport aux valeurs moyennes mondiales. Tandis que l'activité moyenne du potassium-40 est deux fois plus élevée de celle de référence mondiale. La pédologie de cette zone est formée des carapaces et des alluvions. Les sols présentent des natures de sable fin, limono-sableux, limono-argileux, alluviaux argilo-limoneux d'origine basaltique dont le pH est compris entre 4,8 à 5,6. Ces sols sont généralement des produits de décomposition de matière organique [24]. Ceux-ci expliquent la prédominance des activités du potassium-40 par rapport aux deux autres radionucléides uranium-238 et thorium-232. De plus, cette zone est exploitée par la culture de canne à sucre. L'utilisation des engrains augmente le niveau du potassium-40 dans le sol.

En ce qui concerne les rapports entre les trois radionucléides, le potassium-40 n'est pas en corrélation avec les familles de l'uranium-238 et du thorium-232. Les raisons sont que ces radionucléides proviennent des différentes sources et sont dus aux différents processus d'enrichissement/déplétion dans l'environnement [25]. Par contre, l'uranium-238 et le thorium-232 sont en corrélation positive ($R^2 = 0,6$). Cette corrélation signifie que les deux radionucléides proviennent des mêmes minéraux. Dans toutes les zones, l'activité du thorium trouvée est deux fois supérieure de celle de l'uranium. Cela indique que les deux éléments se trouvent dans des minéraux résistants [12].

5. CONCLUSION

Le présent travail permet d'aborder les points importants sur l'étude de la radioactivité naturelle dans le Nord de Madagascar, plus précisément, dans le district d'Ambilobe de la région DIANA.

Soixante-dix échantillons de sols répartis dans cinq zones d'étude ont été collectés et analysés par spectrométrie gamma au NaI(Tl). La méthode de traitement développée par Rybach a été appliquée.

Les résultats révèlent que le potassium-40, la famille de l'uranium-238 et celle du thorium-232 sont détectés dans les sols des cinq zones d'étude.

Pour chaque zone étudiée, les niveaux de la radioactivité de ces trois radionucléides naturels dans les sols varient d'un point à l'autre et ne sont pas uniformément distribués. Les différences de résultats obtenus pour les cinq zones d'étude peuvent s'expliquer par l'interaction avec les formations géologiques et pédologiques des sites d'étude.

Les activités des radionucléides naturels présents dans les sols sont dominées par le potassium-40, suivie de la famille du thorium-232, ainsi que celle de l'uranium-238.

Ces résultats peuvent servir comme bases de données et référence pour des études ultérieures dans le domaine de l'étude de la radioactivité environnementale. La connaissance de ces données permet également d'évaluer d'éventuels risques radiologiques liés aux rayonnements ionisants de la population de ce district.

Reconnaissance : Les travaux scientifiques et les analyses des échantillons ont été effectués dans le Département Analyses et Techniques Nucléaires de l'Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires (INSTN-Madagascar). Ainsi, nos remerciements vont donc :

- A la Direction générale de l'institut, qui a autorisé la réalisation de cette recherche au laboratoire de l'INSTN-Madagascar.
- A l'équipe scientifique et technique du Département ATN qui a facilité l'accès aux équipements de préparation et de mesure, et aidé dans le traitement ainsi qu'à l'interprétation des données.

6. RÉFÉRENCES

- [1]. Rabesiranana, N. Contribution à l'étude de la radioactivité environnementale à Madagascar : de la quantification à l'utilisation des traceurs radio-isotopiques environnementaux. HDR, Université d'Antananarivo, Madagascar (2017).
- [2]. Kall, B., Tombo, T., Rasolonirina, M., Rabesiranana, N. et Rambolamanana, G. Contribution à l'étude de dose due à la radioactivité gamma du sol sur la rive de la baie des Français, Antsiranana, Madagascar. *Afrique Science*. 2015 ; 11(1): 122 – 135.
- [3]. Randriamora, T. H., Razafindramiandra, H. A., Raoelina Andriambololona, Ravelomanantsoa, S. D., Ralaivelos, M. A. L., Rasolonirina, M., Zafimanjato, J. L. R and Randriantseheno, H. F. Determination of Natural Radioactivity in the North East Beach Sands of Madagascar. *American Journal of Physics and Applications*. 2017 ; 5(1): 6-12.
- [4]. Donné, Z., Rasolonirina, M., Djaovagnono, H.C., Kall, B., Rabesiranana, N., & Rajaobelison J. Study of water radioactivity transfer from telluric origin in the Amber Mountain, Antsiranana, Madagascar. *Scientific African*, *Scientific African*. 2021 ; 13: e00902.
- [5]. Donné, Z., Rasolonirina, M., Nirina, S., Rabesiranana, N. et Kall, B. Contribution des eaux de consommation à l'exposition dosimétrique dans la Ville d'Antsiranana, Madagascar. *Afrique science*. 2020 ; 17(1) : 137 – 151.
- [6]. Ndjana Nkoulou, J.E., Feutseu Talla, S., Bineng, G.S., Manga, A., Siaka, Y.F.T. and Saïdou. Natural Radioactivity Measurements in Soil, External Dose and Radiological Hazard Assessment in the Uranium and Thorium Bearing Region of Lolodorf, Cameroon. *Radioisotopes*, 2018 ; 67 : 435–446.
- [7]. Gbadebo, A.M. and Amos, A.J. Assessment of Radionuclide Pollutants in Bedrocks and Soils from Ewekoro Cement Factory, Southwest Nigeria. *Asian Journal of Applied Sciences*. 2010; 3: 135-144.

- [8]. Joel, S., Maxwell, O., Adewoyin, O.O., Olawole, O.C., Arijaje, T.E., Embong, Z., and Saeed, M.A. Estimation of natural environmental radioactif concentration in soil of coastaline area of Ado-dotaieria and its radiological implications. *Sci Rep.* 2019 ; 9 : 4219.
- [9]. Vieillefon, J et Bourgeat, P. Notice sur la carte pédologique de reconnaissance au 1/200000^e, feuille d'Ambilobe.
- [10]. Najam, L.A, Salim Karim, M. and Khalid Hameed, T. Evaluation of natural radioactivity of soil samples from different regions of Wassit governorate. *Pollution.* 2017;3(1): 47-53.
- [11]. Bezuidenhout, J. Measuring naturally occurring uranium in soil and minerals by analysing the 352 keV gamma-ray peak of ²¹⁴Pb using a NaI(Tl)-detector. *Applied Radiation and Isotopes.* 2013; 80: 1 - 6.
- [12]. Nguelem, E.J.M., Ndontchueng, M.M., Ousmanou, M. Determination of Ra, Th, K and U activity concentration and public dose assessment in soil samples from bauxite core deposits in Western Cameroon. *Springerplus.* 2016; 5(1): 1253.
- [13]. United Nation Scientific Committee on the Effects of Atomic (UNSCEAR), "Sources and Effects of Ionizing Radiation: Exposures from natural radiation sources", Report to the General Assembly with scientific annexes B, United Nations, New York (2000).
- [14]. Kall, B., Donne, Z., Rasolonirina, M., Rabesiranana, N. et Rambolamanana, G. Contribution à l'étude de la radioactivité gamma du sable des plages de Ramena et d'Orangea, Antsiranana, Madagascar. *Afrique science.* 2014 ; 10(4): 23- 35.
- [15]. Zubair, M. and Shafiqullah. Measurement of natural radioactivity in several sandy-loamy soil samples from Sijua, Dhanbad, India. *Heliyon.* 2020;6e03430.
- [16]. Samia H. Taha, Osama R. Sallam, Abd Elhadi A. Abbas & Neveen S. Abed. Radioactivity and environmental impacts of ferruginous sandstone and its associating soil. Egypte. ISSN: 0306-7319 (Print) 1029-0397.<https://doi.org/10.1080/03067319.2020.1715377>
- [17]. Ayse Durusoy and Myrieme Yldirim. Determination of radioactivity concentration in soil samples and dose assenssment for Riz Province, Turkey. *Journal of Radiation Research and Applied Sciences.* 2017 ;10 : 348-352.
- [18]. Kumari1, R. Kant, K., Garg, M. Natural radioactivity in rock samples of Aravali hills in India. *International Journal of Radiation Research*, October 2017. Volume 15, No 4.
- [19]. Hashim Gad Elseed, Mohammed Hashim Albashir- Assessment of Natural Radioactivity Concentration and Dose in Surface Soil Samples from Atbara. *European Academic Research.* Otocher 2016 ; 4(7).
- [20]. Amina BRAMKI. Etude de la radioactivité naturelle et artificielle dans les fertilisants et le sol de l'Est Algérien par spectrométrie gamma. Thèse de 3^e cycle, Université. Frères Mentouri-Constantine 1, Algérie (2018).
- [21]. Chiozzi P., De Felice, P., Fazio, A., Pasquale, V., Verdoya, M. Laboratory application of NaI(Tl) gamma-ray spectrometry to the studies of natural radioactivity in geophysics. *Applied Radiation and Isotopes.* 2000 ; 53 : 127-132.
- [22]. Albert Randrianarivo, Fanantenansoa Asivelo Solonjara et Frédéric Asimanana. Contribution à l'étude de la radioactivité du sol de district de Befandriana-Nord, Madagascar. *American Journal of Innovative Research and Applied Sciences.* 2017; 4(1):22-28.
- [23]. Rollando Radomanana Rakotonarivo, Dieudonné Solofonirina Ravelomanantsoa, Rasolonirina Martinet Franck Justinien Ratovonjanahary. Contribution à l'étude de la radioactivité du sol de l'extrême nord de Madagascar. *Am. J. innov. res. appl. sci.* 2019; 8(3): 100-112.
- [24]. Vieillefon J. et Bourgeat P. Notice explicative sur les cartes pédologiques de reconnaissance au 1/200000, Feuille d'Ambilobe. *Office de la Recherche Scientifique et Technique Outre-Mer.* Centre de Tananarive, Paris 1965.
- [25]. Bajoga A.D., Al-Dabbous A.N., Abdullahi A.S., Alazemi N.A., Bachama Y.D., Alaswad S.O. Evaluation of elemental concentrations of uranium, thorium and potassium in top soils from Kuwait. *Nuclear Engineering and Technology.* 2019; 51: 1638-1649.



Cite this article: **Jean Paul Stolerie, Martin Rasolonirina, Zafizara Donné, Briant Kall et Naivo Rabesiranana.** ETUDE DE LA RADIOACTIVITE NATURELLE D'ORIGINE TELLURIQUE DU DISTRICT D'AMBILOBE, MADAGASCAR. *Am. J. innov. res. appl. sci.* 2021; 13(5): 518-529.

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/>