

### Diagramme de Schöeller

Le diagramme de Schöeller (figure 74) permet d'obtenir la qualité chimique des eaux.

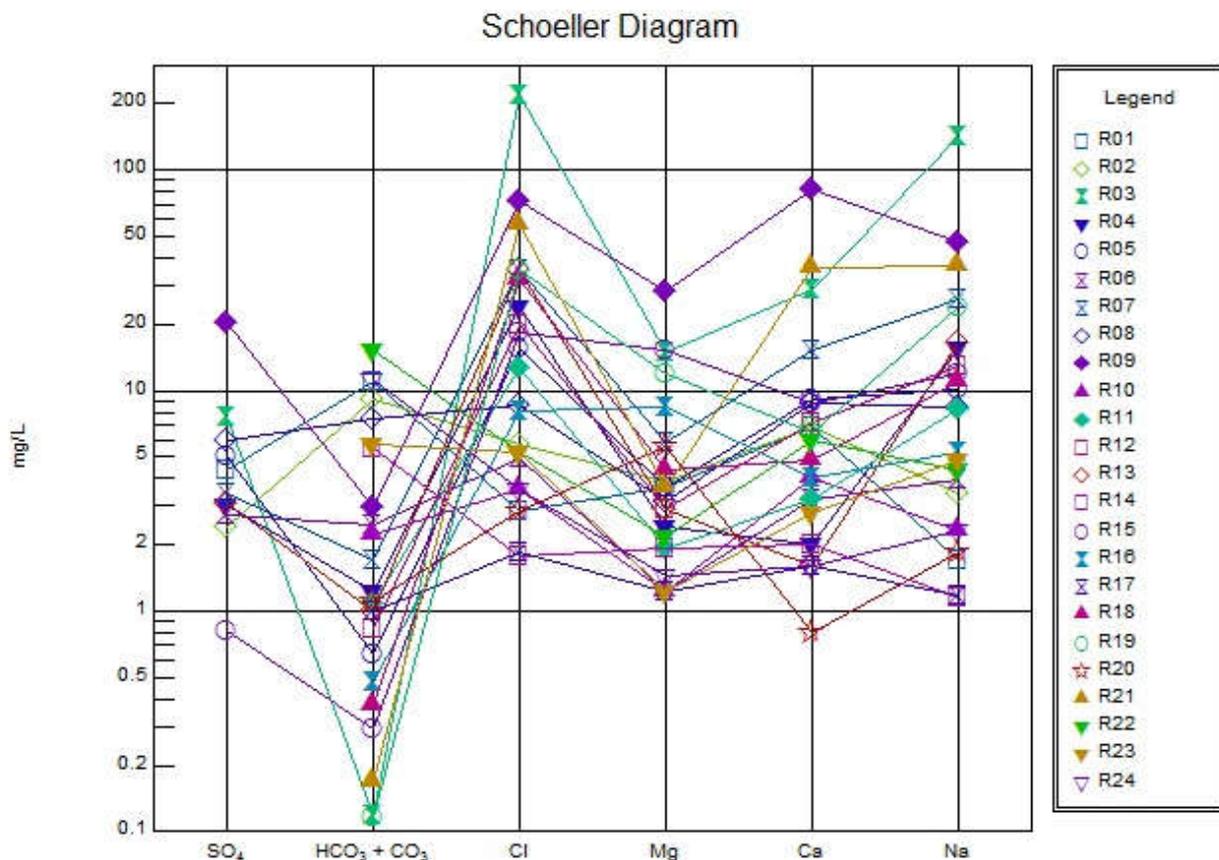


Figure 74 : Diagramme de Schöeller en période d'été

Le diagramme de Schöeller montre deux types de faciès remarquables, les chlorurés calciques sodique ou magnésien et les bicarbonatés calciques. Les faciès chlorurés calciques, chlorurés sodiques et chlorurés calciques et magnésiens indiquent une dissolution des carbonates et des échanges cationiques des éléments Mg, Ca et Na dans les argiles.

On peut tirer du diagramme de Schöeller que les eaux sont de bonne qualité pour les puits R01, R02, R06, R08, R10, R11, R14, R16, R17, R20, R22, R23, R24.

Les eaux des puits R03, R04, R05, R07, R09, R12, R13, R15, R18, R19, et R21 ont de qualité passable.

#### **b) Les autres éléments chimiques**

Trois échantillons d'eaux souterraines des puits R03, R09 et R24 ont été analysés au laboratoire de l'IGAG pour voir la concentration des 70 éléments chimiques. Les résultats obtenus ont été confrontés avec les directives de l'OMS. 12 éléments parmi les 70 sont mentionnés dans la liste de l'OMS. On présente les résultats dans le tableau 10

Tableau 10 : Résultats des analyses des 12 analytes parmi les 70 éléments effectués

<b>Analytes</b>	<b>MDL (ppm)</b>	<b>O (mg/L)</b>	<b>R03 (mg/L)</b>	<b>R24 (mg/L)</b>	<b>R09 (mg/L)</b>
Al	1	0.2	3.25	0.18	0.26
As	0.5	0.01	<0.0005	0.00	<0.0005
B	5	0.5	<0.005	<0.005	<0.005
Ba	0.05	0.7	0.31	3.22	0.22
Cr	0.5	0.05	0.00	0.00	0.02
Cu	0.1	2	0.00	0.00	0.01
Hg	0.1	0.006	<0.0001	0.00	0.00
Ni	0.2	0.07	0.01	0.00	0.00
Pb	0.1		0.01	0.00	0.00
Sb	0.05	0.02	<0.00005	<0.00005	0.00
Se	0.5	0.01	0.00	0.00	<0.0005
Zn	0.5	3	0.19	0.25	0.32

Ces analytes ne présentent pas de valeur douteuse. Leurs concentrations ne dépassent pas la norme de potabilité indiquée par l’OMS à l’exception du puits R03 présentant une concentration de l’aluminium égale à 3,25 mg/L qui est un peu élevée et la concentration élevée du Baryum égale à 3,22 mg/L pour le puits R24 dépassant la norme de potabilité de l’eau(0,2 mg/L et 0,7 mg/L respectivement pour l’Aluminium et le Baryum).

Dans certaines conditions, l’aluminium est reconnu pour ses effets neurotoxiques (Claire Gourier-Fréry et al., ). L’intoxication aiguë au baryum chez l’homme se manifeste par plusieurs signes et symptômes tels que des douleurs abdominales intenses, des diarrhées sanglantes, des troubles cardio-vasculaires. L’intoxication aiguë peut aussi se solder par la mort soit à cause d’une insuffisance respiratoire soit en provoquant un problème cardiaque (INRS, 2012).

Il est donc nécessaire de suivre de près ces deux puits et peut être même faire d’autres analyses aux autres puits avoisinants pour savoir si la contamination est tout simplement locale ou régionale et aussi de comprendre au mieux l’origine cette contamination.

## ETUDE DE LA PERENNITE DE LA RESSOURCE EN EAUX PAR LA DATATION DES EAUX SOUTERRAINES

Dans le cycle de l'eau, le temps de parcours ou le temps de résidence ou encore temps de stockage correspond à une échelle temporelle. Les réservoirs nommés et représentés dans l'exposition « L'eau et les Hommes », ainsi que le temps de résidence associé sont les suivants: être vivant, quelques heures, atmosphère jusqu'à 8 jours, fleuve et rivière jusqu'à 16 jours, lac de 1 à 17 ans, nappe phréatique de 1 à 1 400 ans, océan jusqu'à 2500 ans, et glacier de 1 600 à 10 000 ans (*La Turbine CCSTI, 2004*).

La datation des eaux souterraines permet d'apporter des éléments de réponse aux questions essentielles de la gestion de l'eau. Ce paramètre est indispensable pour la gestion des ressources en eau notamment pour faire face à une pollution dans des délais adéquats (*Potot C, 2011*). La connaissance de ce paramètre est une donnée essentielle pour contraindre les possibilités d'exploitation du réservoir, le temps de réponse de l'écosystème à un changement de pratiques agricoles ou à une action de reconquête du milieu, et donc pour optimiser la gestion de la ressource en eau.

Plusieurs méthodes sont valables pour étudier le temps de résidence de l'eau souterraine. On cite par exemple la méthode de datation par le chlorofluorocarbone (CFC) ou encore le tritium/hélium (*Ayraud V, 2005*). Quelques exemples de méthodes valables pour la quantification de l'infiltration de l'eau souterraine vers les eaux de surface (Tableau 11) sont inscrits dans la dissertation partielle pour l'obtention du doctorat de *Raanan H, 2011*.

Tableau 11 : Exemples de méthodes valables pour la quantification de l'infiltration de l'eau souterraine vers les eaux de surface (dans Raanan H, 2011)

Tracer	Advantages	Disadvantages
Chemical tracers	Integration of large area, readily available, easy to measure, low cost	Multiple sources with indistinguishable chemical fingerprints
Water isotopes ( $\delta^{18}O$ , $\delta^2H$ )	Common tool, easy to measure, powerful when strong differences between end members, relatively low cost	Multiple sources with indistinguishable isotopic fingerprints, seasonal variability, difficult interpretation
Radon	Easy to measure, sensitive to mixing	Losses to the atmosphere in turbulent system and with limited

( <sup>222</sup> Rn)	rate due to short half-life  (3.8 d), low cost, inert	circulation
Strontium isotopes  ( <sup>87</sup> Sr/ <sup>86</sup> Sr)	Sensitive to contrasting lithologies in aquifers, possible tracing anthropogenic processes, no fractionation	Cannot indicate seasonal variability, depend on contrasting lithologies in associated aquifers
Nitrogen isotopes  ( <sup>δ15</sup> N)	Distinguish between nitrogen sources such as wastewater and fertilizers	Isotopic overlaps with natural occurring soil nitrogen, dilution effect, original isotope fingerprints can be modified by internal processes
<b>Physical tracers</b>		
Seepage meters	Direct measurement, inexpensive, accurate	Biased by sampling point, results indicative of the sampling diameter, typically ~1m, often overestimates flow
Stream bed temperature	Inexpensive	Complicated models for interpretation, applicable only for temperature differences
Discharge gauging	Direct measurement	Labor intensive, constant maintenance
Tracer injection	Averages over large area	Influenced by adsorption, potential harmful effects on ecosystem, inappropriate for some temporal and spatial scales

Les isotopes du radium sont aussi actuellement utilisés pour la datation ou encore l'estimation du temps de transfert des eaux souterraines (exemple : *Boucher C et al., 2010* ; *Gattacceca J., 2009*).

L'analyse des isotopes du Radium sera utilisé, ici dans notre cas, pour estimer le temps de parcours des eaux souterraines alluviales et des eaux souterraines peu profondes (<30m) de la plaine d'Antananarivo et des reliefs résiduels et de l'aval des rivières d'Ikopa, de Mamba et de Sisaony.

## IV-2.1 CARACTERISTIQUES PHYSIQUE ET CHIMIQUE DU RADIUM

Le radium a naturellement quatre isotopes ( $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{224}\text{Ra}$  et  $^{223}\text{Ra}$ ), liés aux familles de l'Uranium et du Thorium (IRSN, 2010). Les chaînes de descendance des  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$  et  $^{232}\text{Th}$  sont montrées par la figure 75 (ACRO/LSCE, 2007).

Le  $^{223}\text{Ra}$  et le  $^{224}\text{Ra}$  ont une demi-vie respectivement de 11,4 jours et 3,6 jours. Ceux-ci étant trop courts et ne nous permettent pas de les mesurer. Nous avons donc considéré seulement le  $^{226}\text{Ra}$  (la plus stable entre eux) et le  $^{228}\text{Ra}$ . Leurs demi-vies sont plus longues : respectivement 1600 ans et 5,75 ans.

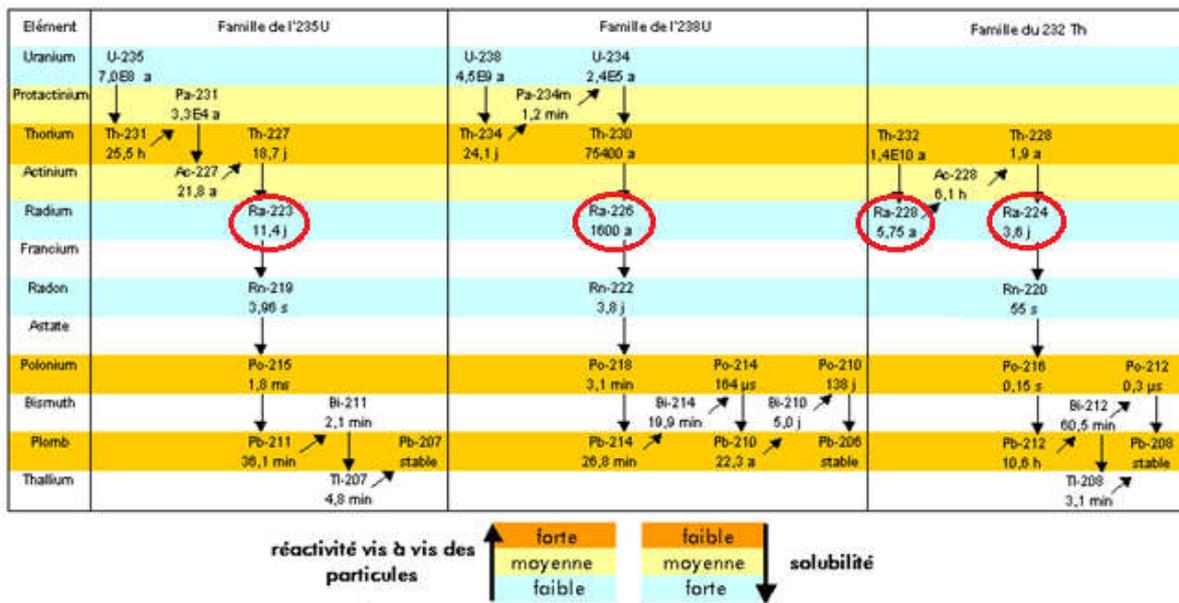


Figure 75 : Chaîne de descendance des noyaux père des quatre isotopes naturels du radium.

## IV-2.2 LE RADIUM DANS LES EAUX SOUTERRAINES

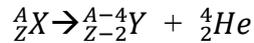
Le Radium s'introduit dans l'aquifère par un mécanisme complexe mais son introduction se fait principalement lors de la recharge par dissolution de la matrice et libération des produits de décroissance de l'uranium (*Joffroy et al., 1998*). Les roches renferment naturellement de l'uranium. L'uranium étant un élément chimique instable se désintègre par le phénomène du rayonnement alpha, beta ou gamma, en ces descendants tels que le thorium, radium, le radon, etc. L'eau souterraine passe souvent à travers des roches renfermant de l'uranium naturel et du radium. Ce qui explique alors la présence du Ra dans l'eau souterraine.

### IV-2.2.1- Le rayonnement alpha

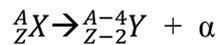
La radioactivité alpha (ou rayonnement alpha, symbolisé  $\alpha$ ) est le rayonnement provoqué par la désintégration alpha, soit la forme de désintégration radioactive où un noyau

atomique X éjecte une particule alpha et se transforme en un noyau Y de nombre de masse diminué de 4 et de numéro atomique diminué de 2.

La désintégration alpha peut être vue comme une forme de fission nucléaire où le noyau père se scinde en deux noyaux fils dont l'un est un noyau d'hélium.



ou

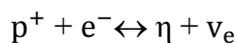


où A représente le nombre de masse (nombre de nucléons), Z le numéro atomique (nombre de protons).

Si on excepte le cas des fissions, le rayonnement alpha est en pratique la seule façon pour un atome de perdre des nucléons, soit donc 4 par 4 (2 neutrons + 2 protons)

#### IV-2.2.2- Le rayonnement beta

La radioactivité bêta ou émission bêta (symbole  $\beta$ ) est, à l'origine, un type de désintégration radioactive dans laquelle une particule bêta (un électron ou un positron) est émise. On parle de désintégration bêta moins ( $\beta^-$ ) ou bêta plus ( $\beta^+$ ) selon que ce soit un électron (particule chargée négativement) ou un positron (particule chargée positivement) qui est émis. La désintégration  $\beta$  se généralise à toutes les réactions nucléaires impliquant les neutrinos ou anti-neutrinos se résumant par la relation suivante :



#### IV-2.2.3- Le rayonnement gamma

Un rayon gamma désigne le rayonnement électromagnétique produit par la désexcitation d'un noyau atomique résultant d'une désintégration. Ce processus d'émission est appelé radioactivité gamma. Usuellement, on appelle rayons gamma les rayonnements issus de l'annihilation d'une paire électron-positron ; c'est un photon de haute énergie, produit au cours des transitions des noyaux entre divers niveaux d'énergies

### EXTRACTION DU RADIUM DANS L'EAU SOUTERRAINE

Plusieurs techniques peuvent être utilisées pour réaliser un échantillonnage d'eau souterraine destiné à l'analyse des isotopes du radium. On peut par exemple utiliser la méthode de Co-précipitation du radium par le sulfate de baryum. Cette technique nécessite la collection d'une grande quantité d'eau (200 litres d'eau naturelle) dont le protocole de concentration du radium est montré dans la thèse de *Potot C, 2010*. Pour le présent travail, on a choisi une méthode plus simple à pratiquer et adaptée à la situation et au moyen de transport des échantillons jusqu'au laboratoire d'analyse. Elle tient compte aussi du temps perdu entre

le moment d'échantillonnage et les travaux de laboratoire, tout en respectant les normes à suivre pour la technique d'échantillonnage de ce genre. Le radium a été collecté en utilisant une fibre avec laquelle on a précipité du permanganate de potassium ( $\text{KMnO}_2$ ). Cette fibre est introduite dans 20 litres d'eau naturelle prise en un point d'eau et fermée dans un bidon en polyester pendant approximativement 24 heures. La fibre est ensuite retirée et séchée à l'ombre et enfermée dans une enveloppe puis emmenée au laboratoire pour l'analyse.

Pour l'échantillonnage des roches, on a pris un échantillon de latérite via un puits, un autre échantillon au niveau de l'aquifère, généralement sableux, et enfin un échantillon de roche venant d'un affleurement du socle aux alentours du puits.

#### IV-2.4 APPAREIL DE MESURE DES ISOTOPES DU RADIUM

On a connu plusieurs méthodes pour l'analyse des isotopes du radium. On cite parmi eux une méthode d'analyse du  $^{226}\text{Ra}$  basé sur la mesure du  $^{222}\text{Rn}$  incarnés dans le laboratoire, cette méthode est appelée « EPA Method 903.1 ». Une autre méthode appelée DOE Method-RP450 pour mesurer le  $^{226}\text{Ra}$  dans un échantillon d'eau consiste à la séparation du  $^{226}\text{Ra}$  par échange ionique, électrodéposition, et analyse par  $\alpha$ -spectrométrie.

Pour le cas de cette étude, l'analyse des isotopes du  $^{226}\text{Ra}$  et  $^{228}\text{Ra}$  a été effectuée avec un spectromètre gamma au laboratoire géochimique de l'IGAG (Istituto di Geologia Ambientale e Geoingegneria). Une autre méthode d'estimation du  $^{226}\text{Ra}$ , inventée par Barlet et consistant à mesurer le  $^{222}\text{Rn}$  par  $\alpha$ -spectrométrie, a été utilisée sur quelques échantillons afin de confronter les résultats obtenus par les deux méthodes.

Comme on n'a pas pu trouver un article qui montre une valeur de référence sur les éléments isotopiques dans les types de roche de notre zone d'étude, des mesures sur trois types d'échantillons de roches de la zone d'étude ont été faites.

#### ***La mesure du rayonnement gamma par le spectromètre- $\gamma$ :***

Le principe de la mesure est simple, on introduit la fibre que l'on a utilisée pour piéger le radium dans une chambre de l'échantillon de la spectrométrie de masse et on mesure l'activité d'émission de rayon gamma pendant une durée approximative de 1 jour. Cette durée peut être plus ou moins d'un jour, dépendant de l'activité d'émission du rayon gamma mais aussi de l'écart-type ou erreur de mesure. Les erreurs ont été minimisées afin d'avoir des résultats de mesures fiables.

L'erreur pourrait être minimisée en prolongeant la durée de la mesure.

Par exemple, notons A et B deux valeurs pour la mesure de radium d'un échantillon avec :

$$A = 100 \pm 50 \text{ et } B = 100 \pm 50$$

Dans ce cas, l'activité correspondante pour les deux mesures est :  $A+B=200$

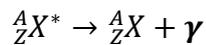
$$\text{Pour l'erreur, on a : } \delta_{(A+B)} = \sqrt{\delta_A^2 + \delta_B^2} = \sqrt{50^2 + 50^2} = 70$$

Cela nous permettons de dire alors qu'on est passé d'une valeur de :

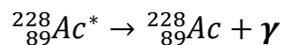
$$100 \pm 50 \text{ à } 100 \pm 35$$

On espère donc minimiser l'erreur en triplant ou en quadruplant la mesure pour un échantillon. En effet, le  $^{226}\text{Ra}$  est un élément émetteur de rayon gamma et le  $^{228}\text{Ra}$  est le père de  $^{228}\text{Ac}$ , ce dernier aussi émetteur de rayon gamma suivant les équations suivantes :

L'équation générale de l'émission gamma ( $\gamma$ ) est comme suit :



Le rayon  $\gamma$  est un photon de haute énergie, produit au cours des transitions des noyaux entre divers niveaux d'énergies.



La désintégration beta ( $\beta$ ) fait intervenir l'émission d'électrons ou de positons.

L'extraction du radium dans l'eau par le permanganate de potassium ( $\text{KMnO}_4$ ) a été inventée par Moore in 1976 (*Grasshoff et al 1999*). Cette méthode consiste à faire passer un large volume d'eaux à travers une cartouche contenant un tissu imbibé de  $\text{KMnO}_4$  avec une vitesse bien ajustée. Cette technique leur a permis d'extraire le radium total des eaux avec une bonne efficacité (*Moore W. S. et Reid D. F., 1973*).

On a développé une technique simple, inspirée de l'invention et adaptée à notre cas de situation.

Les isotopes du radium ont été mesurés en utilisant le spectromètre coaxial gamma équipé d'un détecteur Germanium haute définition (HPGe) model N° GEM 20180-P (figure 76) inventé par la société EG&G ORTEC Company.



Figure 76 : Spectromètre coaxial gamma HPGe et accessoires de EG&G ORTEC Company

#### IV-2.5 RESULTATS DE MESURE DES ISOTOPES DU RADIUM

Quatorze échantillons, provenant des puits et sources de la zone d'étude, ont été mesurés au laboratoire. Ces échantillons représentent les différentes unités hydrogéologique et géologique, ainsi que les types de point d'accès aux eaux souterraines. La répartition spatiale des points d'échantillonnages est présentée à la figure 77.

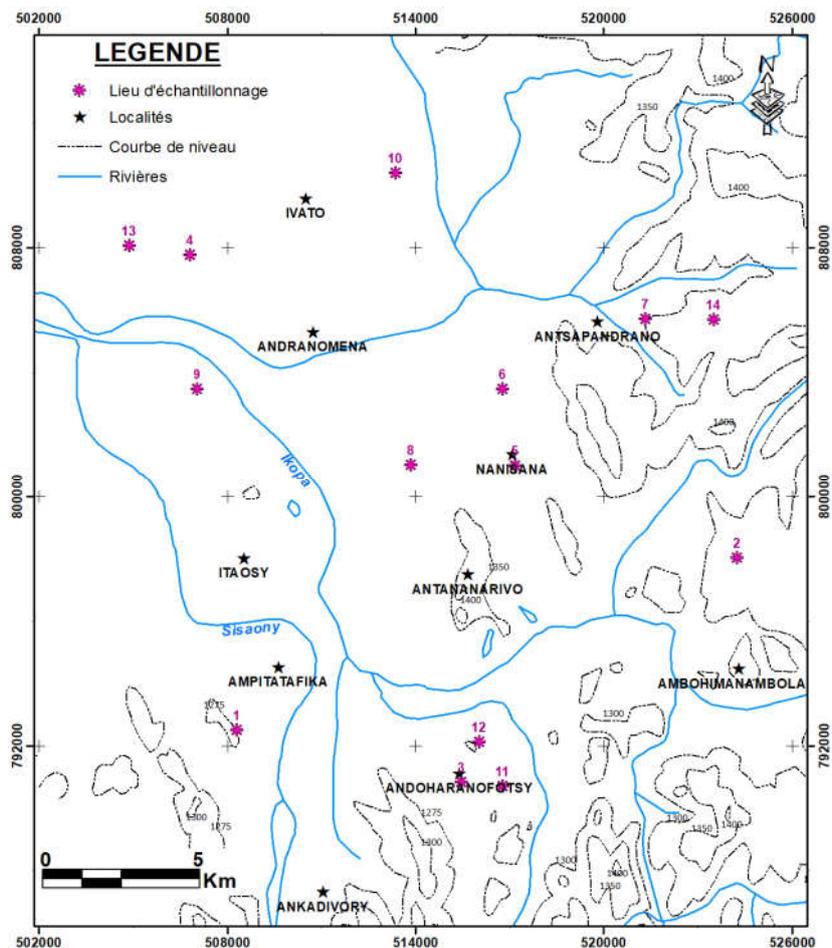


Figure 77: Emplacement des points d'échantillonnage du radium

La présence du radium dans l'eau augmente le risque du cancer. L'accumulation du radium dans le corps humain présente le risque le plus élevé au cancer et plus que les autres éléments radioactifs (Mays et al. 1985; Finkelstein and Kreiger 1996). La concentration totale du radium ( $^{226}\text{Ra}$  et  $^{228}\text{Ra}$ ) et de l'activité du rayon alpha dans l'eau de boisson supérieur à la concentration maximale de contamination est jugée cancérigène. D'après l'agence de protection environnementale des Etats unis (USEPA), le taux maximal accepté (MCL) ne devrait pas dépasser de  $\text{MCL}=5\text{pCi/l} = 185\text{mBq/l}$  pour le radium et  $\text{MCL}=15\text{pCi/l}$  pour la particule alpha), (USGS, 1998).

Parmi les quatorze échantillons analysés, six ont une concentration totale en radium ( $^{226}\text{Ra} + ^{228}\text{Ra}$ ) supérieure à 185 mBq/L (tableau 12). La concentration du  $^{226}\text{Ra}$  est de  $29,2\pm 10,2$  à  $241,7\pm 26,9$  mBq/L et le  $^{228}\text{Ra}$  de  $22,5\pm 4,9$  à  $684,9\pm 13,5$  mBq/L.

Tableau 12: Résultats des analyses des isotopes du radium

Samples	$^{228}\text{Ra}$ (mBqL <sup>-1</sup> )	$^{226}\text{Ra}$ (mBqL <sup>-1</sup> )	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	$^{224}\text{Ra}$ (mBqL <sup>-1</sup> )	$^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$	$^{228}\text{Ra} + ^{226}\text{Ra}$	TDS
1	82.5 ±5	109.7±21.5	0.75±0.15			192.2±22.07	241
2	24.6±4.9	123.9±19.8	0.2±0.05			148.5±20.4	48
3	684.9±13.5	141±25.3	4.86±0.88	349.3±10.5	0.51±0.018	825.9±28.68	1195
4	33.3±5.2	116.3±18.6	0.29±0.06			149.6±19.31	132
5	44.5±6.8	128.9±24.2	0.35±0.08			173.4±25.14	88
6	70.4±7.1	181.3±25.2	0.39±0.07			251.7±26.18	218
7	32.3±6.5	132.9±23.8	0.24±0.07			165.2±24.67	70
8	63±4.8	70.5±17.1	0.89±0.23			133.5±17.76	270
9	62.3±7.1	169.2±24.9	0.37±0.07			231.5±25.89	707
10	22.5±4.9	87.6±17.5	0.26±0.08			110.1±18.7	30
11	75.9±7.2	99.7±15.9	0.76±0.14			175.6±17.45	212
12	100.5±6.3	29.2±10.2	3.44±1.2			129.7±11.99	71
13	139.1±7.9	96.7±15.7	1.44±0.24			235.8±17.58	422
14	63.6±4.3	241.7±26.9	0.26±0.03			305.3±27.24	688
	$^{228}\text{Ra}$ (mBq.kg <sup>-1</sup> )	$^{226}\text{Ra}$ (mBq.kg <sup>-1</sup> )	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$			$^{228}\text{Ra} + ^{226}\text{Ra}$	
Soil 1	120.2±3.6	28±0.9	4.29±0.19			148±3.7	
Soil 2	248.9±6.7	48.2±1.5	5.16±0.21			297.1±6.86	
Soil 3	110.6±3.4	54.3±1.6	2.03±0.09			164.9±3.4	

Les risques sur la santé associés à la présence naturelle des autres éléments radioactifs dans l'eau devraient être aussi pris en considération, bien que la contribution de l'eau de boisson à l'exposition totale aux éléments radionucléides soit très faible sous conditions normales. D'après l'organisation mondiale de la santé, il n'y a pas de valeur guide pour chaque éléments radionucléide dans l'eau (WHO, 2011). Plutôt, l'approche utilisée, pour la qualification des eaux, est basée sur le dépistage de l'activité brute du rayonnement alpha et du rayonnement beta dans l'eau.

L'échantillon 3 présente une concentration la plus élevée. La concentration en radium y est quatre fois plus que la valeur maximale acceptable ( $297.1 \pm 6.86$  mBq.kg-1) de l'USEPA. Il est probable que ceci est lié probablement à la salinité élevée des eaux de ce puits. En effet, une diminution de l'efficacité d'adsorption est observée lorsque la salinité augmente. Ceci est dû au processus de compétition et de déplacement des cations, de l'augmentation de la charge de surface minérale et de l'augmentation de la stabilité des complexes inorganiques (USGS, 2012). La figure 78 montre la relation entre la concentration en radium et la salinité des eaux (TDS). On voit bien que la concentration en radium est proportionnelle au taux de salinité des eaux.

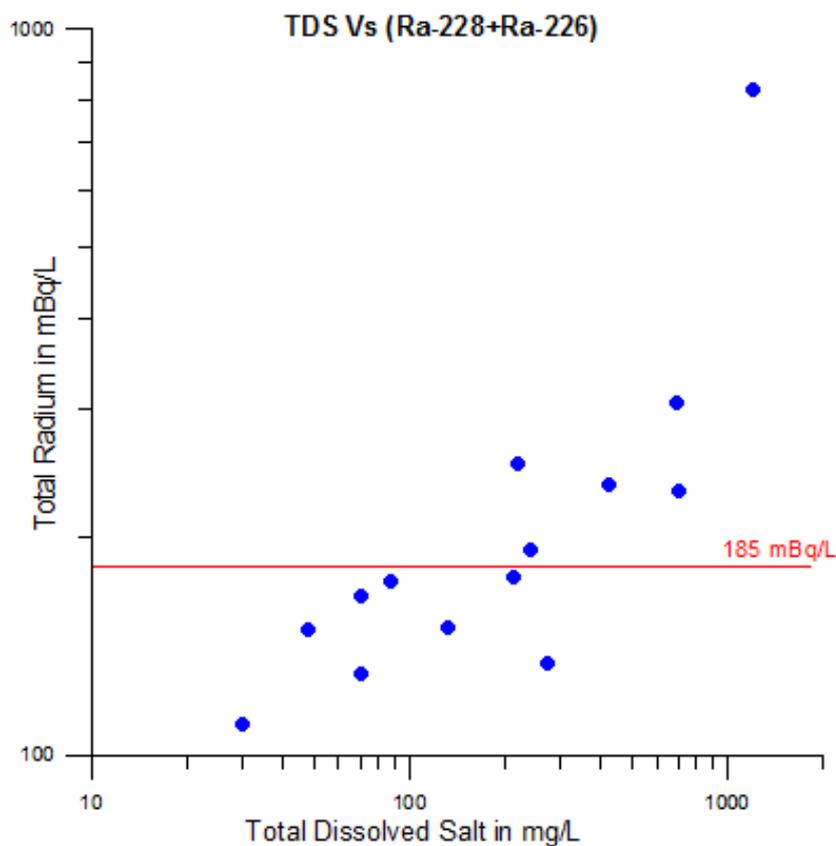


Figure 78 : Relation entre concentration en radium et salinité des eaux

#### IV-2.6 INTERPRETATION DES RESULTATS

Les activités des  $^{228}\text{Ra}$  et  $^{226}\text{Ra}$  des 14 échantillons ont été mesurées. Vu que le temps de disintégration des  $^{224}\text{Ra}$  est très court, seul, l'échantillon 3 a été pris en compte pour la mesure de l'activité du  $^{224}\text{Ra}$  et ceci grâce à son taux de  $^{224}\text{Ra}$  élevé. En plus, les activités du  $^{226}\text{Ra}$  et  $^{228}\text{Ra}$  dans les échantillons de sol aquifère de la zone d'étude ont été mesurées. Le temps de résidence des eaux souterraines a été estimé en utilisant les résultats obtenus.

Les erreurs associées aux mesures ( $1-\sigma$ ) dérivent essentiellement de l'analyse statistique.

Il est à noter que le nombre d'échantillons d'eaux et de sols analysés a été limité car le coût de l'utilisation de l'instrument de mesure est de plus en plus cher proportionnellement à la durée de son utilisation.

La Figure 79 montre l'analyse spectrale de l'échantillon 3. Le spectre gamma a mis en évidence un pic à 238 keV qui a permis de mesurer l'activité du  $^{224}\text{Ra}$  à partir de son noyau fils  $^{212}\text{Pb}$ .

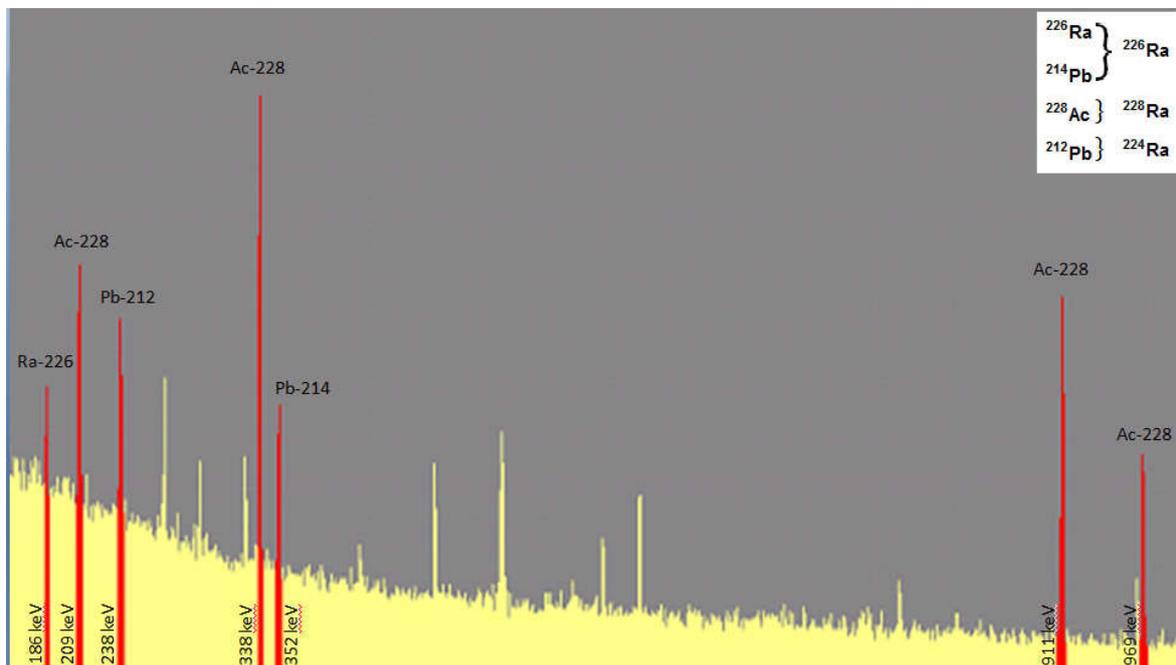


Figure 79: Affichage du résultat de l'analyse spectrale pour l'échantillon 3

#### IV-3.6.1 L'équation principale

D'après Battaglia et al., 1992 et Froehlich et al. 1995, quand *i*) la précipité du Ra des eaux souterraines peut être négligé et *ii*) les conditions d'équilibre séculaire entre  $^{230}\text{Th}$  et  $^{226}\text{Ra}$  ainsi qu'entre  $^{232}\text{Th}$  et  $^{228}\text{Ra}$  peut être assumé, alors l'évolution de l'activité en concentration des isotopes du Ra au fil du temps dans les eaux souterraines est donnée par l'équation suivante :

$${}^i\text{Ra}_w = [(\Delta + \Gamma_i) / (\Phi * \lambda_i * R)] [1 - \exp(-\lambda_i * R * T)] {}^i\text{Ra}_r * \rho_r \quad (1)$$

avec:

${}^i\text{Ra}_w$  = activité des isotopes du radium *i* dans les eaux souterraines ( $\text{mBq} \cdot \text{L}^{-1}$ )

$\Delta$  = constante de la vitesse de dissolution ( $\text{a}^{-1}$ )

$\Gamma_i$  = constante de la vitesse de récule ( $a^{-1}$ ) des isotopes du Ra*i*

$\Phi$  = porosité de l'aquifère (de 0 à 1)

$\lambda_i$  = constante de désintégration des isotopes du Ra*i*

R = facteur de retardation (ratio entre temps de résidence du Ra et temps de résidence des eaux souterraines dans l'aquifère, essentiellement due au processus d'adsorption, varie de 1 à  $\infty$ )

T = temps de résidence des eaux souterraines dans l'aquifère

${}^iRa_r$  = activité des isotopes du radium *i* dans la roche aquifère ( $mBq \cdot kg^{-1}$ )

$\rho_r$  = densité des roches matricielles de l'aquifère

Il apparaît clairement à partir de l'équation 1 que trois variables inconnues devront être à estimer pour trouver T : constante de vitesse de récule, constante de vitesse de dissolution et facteur de retardation.

a) Constante de vitesse de récule et constante de vitesse de dissolution

Dans le cas d'un aquifère poreux :

$$\Delta = V_d \cdot S \quad (2a)$$

et

$$\Gamma_i = \varepsilon \cdot \gamma \cdot \lambda_i \cdot S \quad (2b)$$

Avec  $V_d$  est la vitesse de dissolution ( $\mu \cdot a^{-1}$ ) des grains de l'aquifère poreux et  $S$  ( $\mu^{-1}$ ) est l'extension de la surface de la roche en contact avec l'unité de volume d'eaux souterraines,  $\varepsilon$  est le facteur géométrique de la valeur efficace de récule voisin de 0.235 (Andrews and Kay, 1983) et  $\gamma$  est la gamme de récule du noyau réculé du Ra en micro (voisin de  $0.030 \mu$ ).

La valeur de  $S$  est relative à la surface spécifique interne, ( $\mu^2 \cdot Kg^{-1}$ ) et porosité de l'aquifère,  $\Phi$ , par l'équation :

$$S = (\rho_r \cdot S) / \Phi \quad (3)$$

En cas d'un aquifère poreux à grains sphériques, la surface spécifique interne,  $s$ , est égale à :

$$s = (4\pi r^2) / [(4/3)\pi r^3 \cdot \rho_r] = 3 / (r \cdot \rho_r) \quad (4)$$

où  $r$  est le rayon moyen des grains sphériques (en micron).

Par conséquent, on peut écrire:

$$S = 3/(r \cdot \Phi) \quad (5)$$

Et par conséquent, les équations (2a-2b) deviennent:

$$\Delta = V_d \cdot [3/(r \cdot \Phi)] \quad (6a)$$

et

$$\Gamma_i = \varepsilon \cdot \gamma \cdot \lambda_i [3/(r \cdot \Phi)] \quad (6b)$$

La vitesse de dissolution de l'albite a été choisie comme représentative de la vitesse de dissolution des grains des aquifères poreux. Depuis, ils dérivent principalement de l'altération des roches granitiques. A 25°C et à pH = 6.0, la vitesse de dissolution de l'albite ( $v_d$ ) est voisine de  $0.0031 \mu \cdot a^{-1}$  (Palandri and Kharaka, 2004). La porosité de l'aquifère, la densité des particules et Ra des grains de taille moyennes ont été fixés à 0.30, 2.60 et 250  $\mu$  respectivement, estimant ces valeurs comme valeurs représentatives pour les aquifères sableux.

#### b) Facteur de retard et composition isotopique du Ra

En utilisant l'équation 1 au rapport des isotopes  $^{228}\text{Ra}$  /  $^{226}\text{Ra}$  des eaux souterraines dans la roche aquifère respectivement, et en indiquant ce rapport avec  $\Omega$ , alors on a :

$$(^{228}\text{Ra}_w / ^{226}\text{Ra}_w) / (^{228}\text{Ra}_r / ^{226}\text{Ra}_r) = \Omega$$

$$\Omega = [(\Delta + \Gamma_{228}) / (\Delta + \Gamma_{226})] \cdot (\lambda_{226} / \lambda_{228}) \{ [1 - \exp(-\lambda_{228} \cdot R \cdot T)] / [1 - \exp(-\lambda_{226} \cdot R \cdot T)] \} \quad (7)$$

En considérant que :

$$\lambda_{226} / \lambda_{228} = 0.0036 \text{ and if } \Gamma_{226} \ll \Delta$$

Alors, l'équation 7 devient:

$$\Omega = [(1 + (\Gamma_{228} / \Delta))] \cdot 0.0036 \cdot \{ [1 - \exp(-\lambda_{228} \cdot R \cdot T)] / [1 - \exp(-\lambda_{226} \cdot R \cdot T)] \} \quad (8)$$

A partir de l'équation 8, on peut calculer  $T$  si on peut estimer le facteur de retard  $R$ .

En appliquant l'équation 1 à l'isotope  $^{228}\text{Ra}$ , il est facile de trouver que pour les échantillons avec  $R \cdot T \gg 1 / \lambda_{228}$ ,  $R$  peut être estimé à partir de l'équation 9 suivante:

$$R = [(\Delta + \Gamma_{228}) \cdot ^{228}\text{Ra}_r \cdot \Phi \cdot \lambda_{228}] / ^{228}\text{Ra}_w \quad (9)$$

Seulement pour les échantillons 3 et 12, avec même ordre de  $R \cdot T$  égale à  $1/\lambda_{228}$ ,  $R$  est estimé par le meilleur ajustement des points dans le diagramme  $\log(R)$  vs.  $\log(TDS)$  (Sturchio et al., 2001) correspondant aux autres échantillons avec  $R \cdot T \gg 1/\lambda_{228}$  (Figure 80).

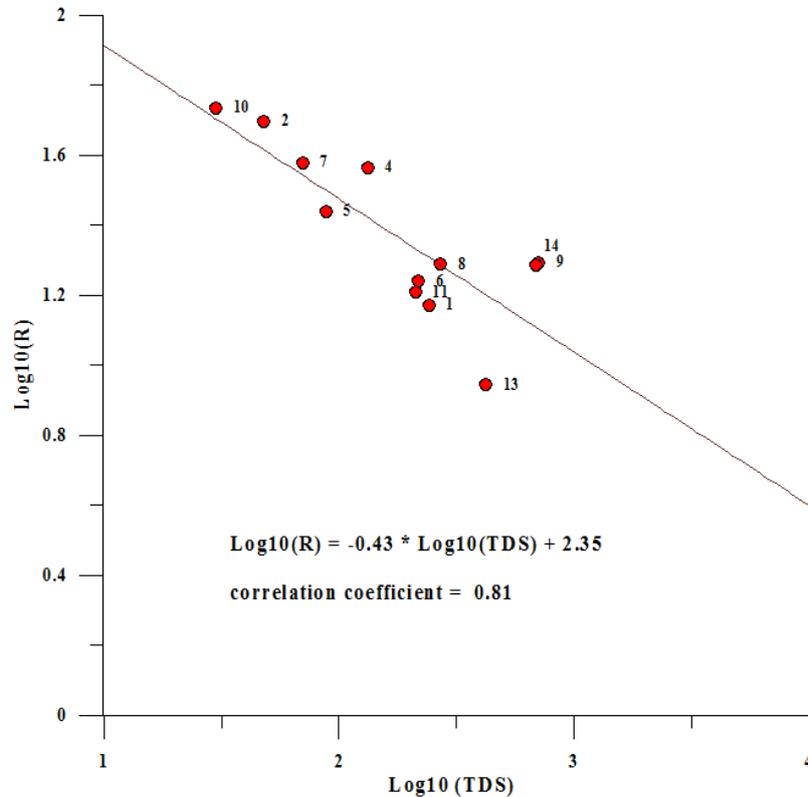


Figure 80 :  $\text{Log}_{10}(\text{TDS})$  vs.  $\text{Log}_{10}(R)$  pour les eaux souterraines avec  $R \cdot T \gg 1/\lambda_{228}$

Selon le modèle décrit précédemment, le temps de residence des eaux peut être calculé à partir de:

- $\Omega$ , qui est le rapport  $(^{224}\text{Ra}_w / ^{228}\text{Ra}_w) / (^{224}\text{Ra}_r / ^{228}\text{Ra}_r)$  (valeur mesurée)
- $V_d$ , vitesse de dissolution des grains de l'aquifère poreux (valeur estimée)
- $\Phi$ : porosité de l'aquifère (valeur estimée)
- $\rho_r$ , densité des particules (valeur estimée)
- $r$ , rayon des grains moyens de l'aquifère poreux (valeur estimée)

Les rapports d'activités  $^{228}\text{Ra}_r$  et  $^{226}\text{Ra}_r$  ont été estimés en moyennant les valeurs trouvées par Randriambololona et al., en 2001 pour les sols d'Antananarivo ( $^{228}\text{Ra} = 75 \text{ Bq kg}^{-1}$ ,  $^{226}\text{Ra} = 14.2 \text{ Bq kg}^{-1}$ ) avec des valeurs moyennes des échantillons composites des roches aquifères ( $^{228}\text{Ra} = 139.2 \text{ Bq kg}^{-1}$ ,  $^{226}\text{Ra} = 34.6 \text{ Bq kg}^{-1}$ ), representative de la géologie locale, collectées dans la zone d'étude et mesurés par le spectromètre gamma dans la présente étude (Tableau 12).