

Mesure des activités de l'uranium (^{238}U , ^{234}U) et du rapport isotopique $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ dans des échantillons d'eau naturelle au Maroc à l'aide de la spectrométrie alpha

A. Choukri^{1,*}, O-K. Hakam¹, H. Bounouira¹, M. Al Ibrahim¹ et J-L. Reyss²

¹ *Université Ibn Tofail, Laboratoire des Faibles Radioactivités et de l'Environnement, Faculté des Sciences, B.P. 133, 14 000, Kénitra, Maroc.*

² *Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, Laboratoire Mixte CNRS-CEA, 91198, Domaine du CNRS, Gif sur Yvette cedex, France*

(Reçu le 16 Mars 2005, accepté le 02 Août 2005)

* Correspondance et tirés à part, e-mail : choukrimajid@yahoo.com

Résumé

Au cours de ce travail, nous avons déterminé les activités spécifiques (^{234}U , ^{238}U) et le rapport d'activités isotopique $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ pour un ensemble de 68 échantillons d'eau naturelle provenant de 5 sources d'eau principales: puits (18 échantillons), sources (17 échantillons de sources chaudes et 7 échantillons de sources de surface dites froides), rivières (13 échantillons), lacs (5 échantillons) et eaux de robinet des villes (8 échantillons). Ces échantillons ont été collectés dans différentes régions du Maroc ayant des caractéristiques géologiques, des activités socio-économiques et des conditions météorologiques différentes. Les résultats obtenus nous ont permis, malgré leur nombre réduit, d'établir des tendances de répartition des paramètres mesurés dans les sources d'eau étudiées surtout pour les sources chaudes dont les résultats montrent clairement de faibles activités d'uranium et de forts rapports $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$. Cette tendance est due essentiellement aux conditions de température et d'oxydo-réduction des eaux chaudes qui favorisent davantage la solubilisation de l'isotope ^{234}U . Ces résultats montrent également que les activités mesurées sont comparables à celles mesurées habituellement dans les eaux naturelles à différentes régions du Monde excluant ainsi toute possibilité de pollution radioactive.

Mots-clés : *Radioactivité naturelle, Eaux naturelles, Uranium, Rapport d'activités isotopique, Puits, Sources, Rivières, Lacs, Eaux de Robinet, Pollution radioactive.*

Abstract

Measurement of the activities of uranium (^{238}U , ^{234}U) and of Isotopic ratio $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ in natural water samples in Morocco using spectrometry alpha

In this work, specific activities of ^{234}U and ^{238}U and isotopic activity ratios have been measured for 68 natural water samples collected from 5 principal sources of water in Morocco: Wells (18 samples), springs (17 hot spring water samples and 7 cold spring water samples), rivers (13 samples), lakes (5 samples) and tap water (8 samples). These samples have been collected in Moroccan regions characterized by various geology, different socio-economical activities. The obtained results have allow us to establish general tendencies of measured parameters repartition in sources of the analysed waters. This tendency is clear for hot springs where activities of uranium are relatively low and $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ activities ratios are important. This is due to temperature and oxydo-reduction conditions of waters that are favourable in particularly to ^{234}U solubility. The results so-obtained are comparable to those habitually found in natural waters in different regions of world and show that there is no radioactive pollution in these waters

Keywords: *Natural radioactivity, Natural waters, Uranium, Isotopic activity ratio, Wells, Springs, Rivers, Lakes, Tap waters, Radioactive pollution.*

1. Introduction

L'uranium est présent dans toutes les roches de l'écorce terrestre, le plus souvent à l'état de traces. Sa concentration dans une roche dépend de la manière dont s'est formée cette roche et de sa constitution chimique. De façon générale, les concentrations en uranium sont faibles dans les roches sédimentaires telles que les calcaires et les grès et dans les roches magmatiques basiques de type basalte et péridotite. Les roches magmatiques acides, telles que les granites, les apatites ou les pegmatites sont souvent plus riche en uranium que les autres roches. L'uranium s'est parfois concentré dans certaines minéralisations et peut donc être présent localement à des teneurs élevées. Lors des processus d'altération des roches, une partie de l'uranium et d'autres radioéléments tels que le thorium, le radium et quelques descendants sont mobilisés par action mécanique de l'eau. Les études déjà réalisées révèlent une image extrêmement complexe des nombreux paramètres qui peuvent influencer le comportement de l'uranium dans les eaux naturelles souterraines ou de surface. Les radioéléments sont transportés par les courants d'eau selon leur solubilité et leur comportement géochimique en fonction de la température, du pH, des conditions oxydo-réductrices ainsi que d'autres paramètres caractéristiques de l'eau.

Les isotopes de l'uranium ^{238}U et ^{234}U ont des propriétés chimiques identiques, et ne sont séparés que par des radio-isotopes de très courtes périodes. Ils devraient être, en principe, en équilibre radioactif dans les milieux naturels. Plusieurs mesures ont montré depuis 1955 qu'un fractionnement de ces radio-isotopes, parfois important, existe dans les roches et les solutions qui passent à travers ces roches selon la nature des roches et des eaux. Les analyses effectuées sur un grand nombre d'échantillons d'eau naturelle de différentes sources à l'échelle internationale ont montré que le déséquilibre entre ^{234}U et ^{238}U est une réalité et non une exception [1-7].

Dans ce travail, nous présentons les résultats concernant l'étude de la répartition des activités des radio-isotopes de l'uranium (^{234}U et ^{238}U) et du rapport d'activités $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ dans un ensemble d'échantillons d'eau naturelle prélevés à partir de plusieurs sources d'eau (puits, sources, rivières, lacs, eaux de robinet) situées à plusieurs endroits au Maroc. Nous essayerons de discuter également les causes de cette variation et les facteurs qui sont à l'origine du fractionnement des radio-isotopes de l'uranium.

2. Echantillonnage

2-1. Sites d'échantillonnage

Les échantillons d'eau analysés appartiennent à 5 sources différentes : puits, sources, rivières, lacs et eaux de robinet. La **Figure 1** montre les sites d'échantillonnage. Cette étude a été entreprise dans le but d'établir une carte de la répartition de la radioactivité dans les différentes eaux naturelles au Maroc. Les résultats obtenus permettront de discuter la variation des activités des radio-isotopes de l'uranium et du rapport isotopique $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ en fonction de la nature de la source d'eau, son cadre géographique, géologique et socio-économique. Plusieurs régions ont été choisies de façon à avoir une idée générale dans le but d'orienter l'échantillonnage afin d'établir une carte de la répartition de l'uranium dans les eaux naturelles à travers tout le Maroc.

Les régions des villes de Fès et d'Errachidia sont riches en sources thermales (chaudes). L'eau de certaines de ces sources est commercialisée comme celle de Sidi Harazem et d'autres sont utilisées comme bain de thérapie pour certaines maladies de peau, comme celles de Moulay Yacoub, Aïn Allah, Aïn El Aati, Source bleue de Meski, Hammat Moulay Ali et Hammat Moulay hachem.

Les régions situées vers l'intérieur du pays sont souvent affectées par la sécheresse, ce qui explique le nombre considérable de puits dans ces régions. C'est le cas, par exemple, des régions des villes de Khouribga, Beni Mellal et Fkih Ben Salah. La région de la ville de Khouribga est située sur un vaste plateau de phosphates. Dans le but de vérifier l'influence de ce plateau phosphatier sur les eaux potables dans cette région, dont les

puits constituent la source principale, nous avons échantillonné quatre puits dont l'un est situé à côté d'un grand site d'extraction de phosphates.

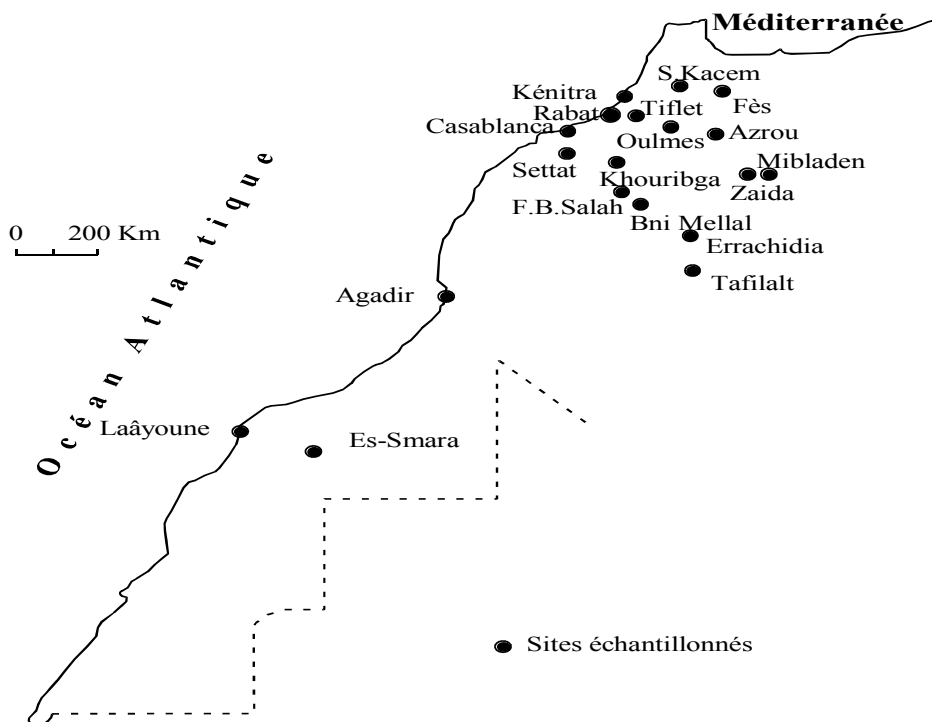


Figure 1: Carte montrant les régions d'échantillonnage d'eau.

La ville de Beni Mellal est située à côté des montagnes de la chaîne du Haut Atlas à partir desquelles coulent les eaux de surface qui constituent ce qu'on appelle sources de surface ou sources froides. Parmi les sources les plus célèbres d'un point de vue touristique, à l'échelle nationale et même à l'échelle internationale, on cite les sources Aïn Asserdoune et Fom El Anser.

La rivière Oum Rabiâ est connue par son grand débit à l'échelle nationale. Elle passe tout près du plateau phosphatier de Khouribga et dont certains affluents traversent ce plateau. Elle a été échantillonnée en 3 points différents, dont celui de Settât qui est loin de la région des phosphates.

L'oued Moulouya est une rivière qui s'étale sur 600 Km environ et traverse des terrains dont la lithologie varie du Paléozoïque jusqu'au Quaternaire. Il passe par des régions riches en mines et reçoit des déchets des rejets urbains, industriels, miniers et agricoles.

Les échantillons, collectés dans les régions sahariennes au sud du Maroc, proviennent principalement des nappes souterraines qui constituent la source capitale de l'eau potable dans ces régions.

La rivière de Tamraght a été échantillonnée dans le but de vérifier s'il y a une corrélation entre les activités des radio-isotopes de l'uranium et le rapport d'activité radioactif $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ dans l'eau de cette rivière et dans les échantillons de coquilles de mollusques fossiles prélevées dans des plages marines fossiles situées à des altitudes comprises entre 4 et 8 m du niveau de l'eau de mer actuel à l'estuaire de cette rivière [8,9].

Après plusieurs années de sécheresse au Maroc, plusieurs lacs ont disparu ou ne maintiennent pas l'eau de pluie pour longtemps. Ce qui explique la rareté des lacs rencontrés lors des campagnes d'échantillonnage. Parmi les lacs échantillonnés, on trouve celui de Sidi Boughaba, situé dans une forêt considérée comme une réserve internationale et qui reçoit chaque année en hiver des oiseaux du Nord. On trouve aussi le lac Fouarat, qui est alimenté entre autres par les eaux usées de la ville de Kénitra [10].

2-2. Technique d'échantillonnage

La technique d'échantillonnage consiste à prélever, dans des bouteilles hydrologiques, une quantité d'eau de 5 litres lorsqu'il s'agit uniquement de l'analyse de l'uranium et de 20 litres lorsqu'il s'agit d'une analyse double de l'uranium et du radium. L'eau est acidifiée à pH 2 avec HCl concentré; une quantité de traceurs (^{232}U - ^{228}Th) est introduite afin de connaître le rendement global : récupération, traitement chimique et comptage. Après homogénéisation, l'uranium et le thorium sont co-précipités en présence d'un entraîneur FeCl_3 par ajout de l'ammoniaque à pH 8 à 9 dans le milieu. Ce précipité est récupéré dans la même journée par centrifugation ou par filtration.

3. Méthodologie

Les deux radio-isotopes de l'uranium ^{234}U et ^{238}U ainsi que le traceur ^{232}U sont émetteurs alpha, ce qui facilite l'utilisation de la spectrométrie alpha pour mesurer les activités de ces radio-isotopes. Elle nécessite un traitement chimique poussé pour deux raisons principales :

- Les particules alpha sont facilement absorbées dans la matière, il faut donc purifier au maximum les radioéléments de façon à obtenir des sources sous forme de couches ultra minces sur un support, plus les sources sont minces, mieux les pics seront résolus et faciles à dépouiller.

- Les énergies de l' ^{234}U et du ^{230}Th d'une part, et celles de ^{232}U et du ^{228}Th utilisés comme traceurs d'autre part, sont trop proches pour les séparer dans l'état actuel de moyens de mesure.

La procédure chimique adoptée au cours de ce travail est basée sur les principes décrits par [8-10,12]. Elle est basée sur une combinaison d'un ensemble de séparations et purifications à l'aide de la résine anionique *Dowex IX8*, et d'extractions utilisant des solvants organiques. Le comptage est réalisé à l'aide d'un détecteur semi-conducteur à barrière de surface caractérisé par sa bonne résolution (de 20 à 50 keV en fonction de la distance source - détecteur et de la qualité du dépôt). Dans un échantillon d'eau, le thorium existe en très faible quantité dans les eaux naturelles du fait qu'il est faiblement soluble et s'adsorbe sur les particules en suspension qui sont, soient entraînées vers le fond, soient éliminées par filtration au début de la manipulation; c'est pour cette raison qu'on n'intéresse pas à sa mesure dans les échantillons d'eau.

4. Résultats et interprétation

Les résultats d'analyse des 68 échantillons d'eau collectés à partir de 18 puits, 24 sources (17 chaudes et 7 de surface), 13 rivières, 5 Lacs et eaux de robinet de 8 Villes situés dans plusieurs régions du Maroc sont donnés dans les **Tableaux 1** (puits), **2** (rivières), **3** (sources), **4** (lacs) et **5** (eaux de robinet). Ces résultats concernent les activités spécifiques des principaux radio-isotopes de l'uranium (^{234}U et ^{238}U) et leur rapport d'activités $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$.

Tableau 1 : Activités spécifiques de ^{234}U et ^{238}U et rapports d'activités $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ mesurés dans les échantillons d'eau de puits

échantillon	région	^{234}U (mBq/L)		^{238}U (mBq/L)		$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	
Settat	Settat	167	± 27	165	± 27	1,01	$\pm 0,04$
Beni Yakhlef	Khouribga	4,4	$\pm 0,3$	4,5	$\pm 0,3$	1,98	$\pm 0,12$
Ourghida	Khouribga	24	± 2	23	± 2	1,08	$\pm 0,05$
Lahmina	Khouribga	30	± 2	26	± 2	1,16	$\pm 0,04$
Ouled Sasi	Khouribga	51	± 10	64	± 8	0,80	$\pm 0,06$
Ouled Azouz	Khouribga	55	± 5	63	± 5	0,88	$\pm 0,04$
1km extr. Phos.	Khouribga	243	± 22	308	± 28	0,79	$\pm 0,02$
Jorf Mellha	Sidi Kacem	24,4	$\pm 2,2$	16,8	$\pm 1,6$	1,45	$\pm 0,11$
Tiflet	Tiflet	161	± 17	57	± 5	2,83	$\pm 0,12$
Beni Mellal	Beni Mellal	13	± 1	6,3	$\pm 0,5$	2,11	$\pm 0,13$

Ouled Réguia	F.B. Salah	61	± 4	61	± 4	1,01	±0,02
Béni-Amir	F.B. Salah	44	± 4	46	± 4	0,97	±0,03
Zrigat	Errachidia	71	± 6	34,	± 3	2,08	±0,12
Erfoud	Tafilalt	169	± 17	64	± 7	2,64	±0,21
Rissani	Tafilalt	124	± 10	55	± 5	2,26	±0,11
Mibladen	Moulouya	273	± 25	97	± 9	2,82	±0,09
Foum Echgag	Es_Smara	181	± 16	114	± 10	1,58	±0,05
Daoura	Lâayoune	389	± 41	124	± 13	3,14	±0,10

Tableau 2 : *Activités spécifiques de ^{234}U et ^{238}U et rapports d'activités $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ mesurés dans les échantillons d'eau de rivières*

Echantillon	région	^{234}U (mBq/L)	^{238}U (mBq/L)	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
Tamraght	Agadir	27 ± 1	13 ± 1	2,14 ± 0,07
Sebou	Kénitra	18 ± 3	13 ± 2	1,38 ± 0,12
Fouarat	Kénitra	13 ± 2	11 ± 2	1,07 ± 0,05
Oum Rabiâ	Settat	17 ± 2	10 ± 1	1,55 ± 0,09
Oum Rabiâ	Kas.Tadla	22 ± 2	14 ± 2	1,54 ± 0,16
Oum Rabiâ	FBS-B.Mel	33 ± 3	21 ± 2	1,53 ± 0,12
Nfifikh	Casablanca	51 ± 5	28 ± 3	1,84 ± 0,09
Bouregreg	Rabat	31 ± 3	24 ± 2	1,28 ± 0,10
Ouerrha	Sidi Kacem	8 ± 1	6 ± 1	1,30 ± 0,20
Tiflet	Tiflet	68 ± 5	27 ± 2	2,49 ± 0,15
Oued Ziz	Errachidia	163 ± 14	67 ± 7	2,44 ± 0,17
Boussouloum	Moulouya	369 ± 39	139 ± 15	2,66 ± 0,08
At Ksabi	Moulouya	81 ± 7	39 ± 4	2,10 ± 0,10

Tableau 3 : *Activités spécifiques de ^{234}U et ^{238}U et rapports d'activités $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ mesurés dans les échantillons d'eau de sources*

Echantillon	région	^{234}U (mBq/L)	^{238}U (mBq/L)	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
Sources chaudes				
Sidi Harazem ^S (1)	Fès	39 ± 4	6,1 ± 0,7	6,45 ± 0,53
Sidi Harazem ^S (2)	Fès	39 ± 4	5,2 ± 0,6	7,39 ± 0,62
Sidi Harazem ^C	Fès	36 ± 3	5,2 ± 0,5	6,94 ± 0,56
Aïn Allah (1)	Fès	26 ± 2	5,4 ± 0,6	4,76 ± 0,32

Aïn Allah (2)	Fès	27	±3	8,5	± 1,1	3,13	±0,26
My Yacoub	Fès	12	±1	6,5	± 0,8	1,84	±0,25
Oulmès ^C	Oulmès	2,4	±0,3	0,6	± 0,1	4,13	±0,74
Sidi Ali ^C	Sidi Ali	4,9	±0,7	5,1	± 0,8	0,97	±0,15
Ouled Réguaia(1)	F.B.Salah	41,1	±2,3	18	± 1	2,30	±0,12
Ouled Réguaia(2)	F.B.Salah	36	±3	15,5	± 1,2	2,31	±0,10
Hamatt My.Hachem	Errachidia	49	±4	14	± 2	3,60	±0,48
Hamatt My.Ali	Errachidia	8,6	±0,6	3,0	± 0,3	2,86	±0,31
Source bleue Meski	Errachidia	47	±4	16	± 2	3,03	±0,35
Ain el Aathi	Errachidia	55	±4	23	± 2	2,36	±0,13
Lamsaid	Lâayoune	47	±4	33	± 4	1,44	±0,8
Tissgrade	Lâayoune	47	±5	35	± 5	1,33	±0,9
3Km-Mibladen	Moulouya	55	±5	37	± 3	1,47	±0,07

Sources de surface

Source charmou	Azrou	8,1	±0,9	3,2	± 0,5	2,53	±0,43
Source Kharzouza	Azrou	7,3	±0,5	2,2	± 0,3	3,27	±0,44
Jorf Mellha	Tiflet	34	±3	24	± 2	1,45	±0,11
Tiflet	Tiflet	43	±3	19,3	± 1,4	2,24	±0,13
Foum-el-Ansèr	Beni Mellal	11	±1	2,2	± 0,4	4,85	±0,72
Ain-Asserdoun	Beni Mellal	15	±1	2,9	± 0,3	5,31	±0,51
Tarhbalout	Beni Mellal	22	±1	2,7	± 0,2	8,30	±0,62

S : eau brute de la source

C : eau minérale commercialisée

Tableau 4 : Activités spécifiques de ²³⁴U et ²³⁸U et rapports d'activités ²³⁴U/²³⁸U mesurés dans les échantillons d'eau de lacs

échantillon	Région	²³⁴ U(mBq/L)	²³⁸ U(mBq/L)	²³⁴ U/ ²³⁸ U
Fouarat	Kénitra	7,3 ±0,8	6,4 ±0,7	0,87 ±0,09
Boughaba	Mehdia	31,6 ±8,5	23,6 ±6,4	1,11 ±0,17
Beni Yakhlef	Khouribga	10,8 ±1,2	9 ±1	1,16 ±0,10
5 km-Mibladen	Moulouya	293 ±29	107 ±11	2,28 ±0,08
Zaida	Moulouya	63 ±7	38 ±4	1,63 ±0,10

Tableau 5 : *Activités spécifiques de ^{234}U et ^{238}U et rapports d'activités $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ mesurés dans les échantillons d'eau de robinet*

échantillon	région	^{234}U (mBq/L)	^{238}U (mBq/L)	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$
Kénitra	Kénitra	2,9 ±0,4	2,5 ±0,3	1,14 ±0,21
khouribga	khouribga	22 ±2	15,7 ±1,4	1,38 ±0,07
Errachidia	Errachidia	34,1 ±3,5	10,2 ±1,4	3,35 ±0,41
Beni Mellal	Beni Mellal	12,8 ±1,7	8,3 ±1,2	1,54 ±0,24
Kasba Tadla	Kasba Tadla	15 ±1	7,2 ±0,6	2,08 ±0,12
Fkih Ben Salah	F.B. Salah	25 ±2	13 ±1	1,91 ±0,08
Gwaiaze	Es-Smara	58 ±5	33 ±3	1,78 ±0,10
Lâayoune	Lâayoune	41 ±4	34 ±3	1,20 ±0,07

Si on considère l'ensemble des échantillons, les activités de ^{234}U et ^{238}U et les rapports d'activités $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ varient dans de larges intervalles.

L'activité de ^{234}U varie de $2,4 \pm 0,3$ mBq/L mesurée dans l'eau de bouteille commercialisée de Oulmès à 389 ± 41 mBq/L mesurée dans l'eau du puits de Doura dans la région de la ville de Lâayoune au Sahara Marocain dans une zone riche en phosphates, soit un rapport d'environ 162 fois entre la valeur maximale et la valeur minimale. L'activité de ^{238}U varie de $0,59 \pm 0,09$ mBq/L mesurée dans l'eau de bouteille commercialisée de Oulmès à 308 ± 28 mBq/L mesurée dans l'eau du puits situé à 1 km du site d'extraction des phosphates dans la région de la ville de Khouribga, soit un rapport de variation d'environ 523 fois. Le rapport $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ varie entre $0,79 \pm 0,02$ mesuré dans l'échantillon d'eau de puits situé à 1 Km du site d'extraction des phosphates près de la ville de Khouribga et $8,30 \pm 0,62$ mesuré dans l'échantillon d'eau de la source de surface Tarhbalout situé dans la région de la ville de Beni Mellal, soit un rapport de variation d'environ 10,5 fois.

Si on considère séparément chaque source d'eau, la variation des activités et des rapports d'activités dépend de la nature de la source et de son emplacement selon qu'elle soit souterraine ou de surface comme le montre les résultats des **Tableaux 3,4,5** et **6**. Le **Tableau 6** donne une étude statistique pour chaque source. Les activités et les rapports d'activités mesurés dans les échantillons analysés varient d'une source d'eau à une autre. Le nombre d'échantillons n'est pas très grand pour que l'on puisse généraliser l'interprétation, mais les résultats obtenus permettent de déduire des tendances globales de la variation de certains paramètres. Le comportement géochimique de l'uranium dépend des conditions du milieu où l'uranium peut être

susceptible de passer de la phase solide à la phase liquide, d'être transporté avant de précipiter. Les domaines de stabilité et de solubilité des isotopes de l'uranium sont délicats à déterminer avec précision. Langmuir (1978) a pu étudier les domaines de stabilité des principales espèces de l'uranium. Les concentrations de l'uranium dépendent de l'état d'oxydation, des conditions de pH, de Eh, des concentrations en ions et de la température.

Tableau 6 : Répartition statistique des activités et du rapport d'activité dans les différentes sources d'eau (les activités sont en mBq/L)

		min.	Moy.	Max.
puits (18 échantillons)	²³⁴ U	4,37	82,81	243
	²³⁸ U	4,46	66,12	308,43
	²³⁴ U/ ²³⁸ U	0,79	1,54	25,00
Sources chaudes (17 échantillons)	²³⁴ U	2,4	30,1	54,46
	²³⁸ U	0,59	5,31	8,51
	²³⁴ U/ ²³⁸ U	0,97	4,45	7,39
Sources froides (7 échantillons)	²³⁴ U	7,33	20,17	43,31
	²³⁸ U	2,19	8,02	23,65
	²³⁴ U/ ²³⁸ U	1,45	3,99	8,30
Rivières (13 échantillons)	²³⁴ U	7,86	40,97	163,06
	²³⁸ U	9,66	17,56	27,83
	²³⁴ U/ ²³⁸ U	1,07	1,66	2,49
Eaux de Robinet (8 échantillons)	²³⁴ U	2,86	18,54	34,14
	²³⁸ U	2,50	9,47	15,70
	²³⁴ U/ ²³⁸ U	1,14	1,90	3,35
Lacs (5 échantillons)	²³⁴ U	7,32	16,57	31,76
	²³⁸ U	6,00	13	23,66
	²³⁴ U/ ²³⁸ U	0,87	1,05	1,16

Le rapport d'activité ²³⁴U/²³⁸U, dont l'origine a été bien expliquée par plusieurs Auteurs depuis sa mise en évidence [13,14] semble être influencé par la nature et les conditions de l'eau. Dans les eaux de sources, il est nettement plus élevé que dans les échantillons

d'autres origines. A l'exception de l'échantillon de la source de Sidi Ali qui a un rapport d'activité pratiquement équilibré (égal à $0,97 \pm 0,03$), le rapport $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ varie dans les sources chaudes entre 1,84 et 7,39 avec une valeur moyenne autour de 4. Dans les sources froides, il varie entre 1,45 et 8,30 avec une valeur moyenne également de 4.

Les résultats montrent que les échantillons ayant de faibles activités sont caractérisés par les rapports d'activité $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ les plus élevés, ceux ayant les fortes activités sont caractérisés par les rapports les plus petits. Pour les activités intermédiaires, aucune relation entre l'activité ^{238}U et le rapport $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ n'est évidente. L'uranium est un élément utile dans l'étude des conditions d'oxydo-réduction d'eaux souterraines car il possède plusieurs valences. Nous pouvons déterminer les conditions d'oxydo-réduction du milieu étudié à l'aide de sa concentration et de sa forme chimique en solution et des valeurs du rapport $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$.

Dans des conditions oxydantes, l'uranium est très soluble principalement sous la forme de complexes carbonatés U(VI). Dans des conditions réductrices, l'uranium est insoluble sous la forme d'oxydes-U(IV) [15]. Des concentrations importantes en uranium et de faibles rapports d'activité $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ indiqueraient des conditions oxydantes.

Inversement, de faibles concentrations en uranium dues à la faible solubilité de l'uranium en milieu réducteur et des hauts rapports d'activité $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ sont signes de conditions réductrices [4,6]. En effet, dans des conditions réductrices, ^{238}U n'est pas dissous ou est précipité. ^{234}U est expulsé des réseaux cristallins. Cette expulsion est due au mouvement de recul α et (ou) au lessivage sélectif causé par la dégradation du réseau cristallin du fait des réactions nucléaires [16]. Autrement dit, dans de telles eaux, l'effet de recul, enrichissant la phase liquide en ^{234}U , est prépondérant par rapport à la mise en solution de ^{238}U [17]. La libération de ^{234}U en solution est accrue dans le cas des hauts rapports eau/roche [18].

5. Conclusion

Au cours de ce travail, les activités spécifiques (^{234}U , ^{238}U) et le rapport d'activités isotopique $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ont été déterminés par spectrométrie alpha pour un ensemble de 68 échantillons d'eau naturelle provenant de 5 sources d'eau principales: puits (18 échantillons), sources (17 échantillons de sources chaudes et 7 échantillons de sources de surface dites froides), rivières (13 échantillons), lacs (5 échantillons) et eaux de robinet des villes (8 échantillons). Ces échantillons ont été collectés dans différentes régions du Maroc ayant des caractéristiques géologiques, des activités socio-économiques et des conditions météorologiques différentes. Les activités et les rapports d'activités mesurés dans les échantillons analysés varient d'une source d'eau à une autre. Le nombre d'échantillons n'est pas très grand pour que l'on puisse généraliser l'interprétation, mais

les résultats obtenus permettent de déduire des tendances globales de la variation de certains paramètres.

Les résultats montrent que les échantillons ayant de faibles activités sont caractérisés par les rapports d'activité $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ les plus élevés, ceux ayant les fortes activités sont caractérisés par les rapports les plus petits. Pour les activités intermédiaires, aucune relation entre l'activité ^{238}U et le rapport $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ n'est évidente.

Le rapport d'activité $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, dont l'origine a été bien expliqué par plusieurs auteurs depuis sa mise en évidence, semble être influencé par la nature et les conditions de l'eau. Dans les eaux de sources, il est nettement plus élevé que dans les échantillons d'autres origines. A l'exception de l'échantillon de la source de Sidi Ali qui a un rapport d'activité pratiquement équilibré (égal à $0,97 \pm 0,03$), le rapport $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ varie dans les sources chaudes entre 1,84 et 7,39 avec une valeur moyenne autour de 4. Dans les sources froides, il varie entre 1,45 et 8,30 avec une valeur moyenne identique que celle calculée pour les sources chaudes.

Les résultats obtenus sont comparables à ceux que l'on mesure habituellement dans les eaux naturelles à différentes régions du Monde excluant ainsi toute possibilité de pollution radioactive.

Remerciements

Ce travail a été réalisé dans le cadre de l'UFR "Faibles Radioactivités, Physique Mathématique et Environnement", Université Ibn Tofail, Faculté des Sciences, Kénitra-Maroc et dans le cadre du projet PROTARS II (n° 21/60) financé par le Centre National pour la Recherche Scientifique et Technique au Maroc

Références

- [1] - J. N. Andrews, R. Linden, & R. L. F. Kay, " $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ activity ratios of dissolved uranium in groundwaters from a Jurassic Limestone aquifer in England." *Earth. Plan. Sci. Lett.*, 57 (1982)139-151
- [2] - M. Asikainen & H. Kahols, "*Anomalously High concentrations of uranium, radium and radon in water from drilled wells in the Helsinki region.*" *Geochim. Cosmochim. Acta*, 43 (1979) 1681-1686.
- [3] - P. I. Chalov, T. V. Tuzova & Y. A. Musin, "*The $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ratio in natural water and its use in nuclear geochronology.*" *Geoch. Int.*, 3 (1964) 402-408.
- [4] - J. B. Cowart & J. K. Osmond, "*Uranium isotopes in ground water: Their use in prospecting for sandstone-type uranium deposits.*" *J. Geochem. Explor.*, 8 (1977) 365-379
- [5] - B. L. Dickson & M. R. Davidson, "*Interpretation of $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ activity ratios in groundwaters.*" *Isot. Geosci.*, 58 (1986) 83-88.

- [6] - [N. Hussain, & S. Krishnaswami, "*U-238 series radioactive disequilibrium in groundwaters: Implications to the origin of excess U-238 and fate of reactive pollutants.*" *Geochim. Cosmochim. Acta*, 44 (1980) 1287-1291.
- [7] - M. Ivanovich & R. Harmon "*Uranium series disequilibrium: Applications to earth, marine and environmental sciences.*" Clarendon Press, Oxford. (2nd edition), (1992) 910p.
- [8] - A. Choukri "*Application des méthodes de datation par les séries de l'uranium à l'identification des hauts niveaux marins sur la côte égyptienne de la Mer Rouge au moyen de coraux, radioles d'oursins et coquilles, et sur la côte atlantique du Haut Atlas au Maroc, au moyen de coquilles.*" Thèse d'Etat, Université Med V, Rabat, (1994) 192p.
- [9] - O.K. Hakam, "*Etude de la répartition des activités des radio-isotopes de l'uranium et du radium dans les eaux naturelles et du radon dans l'air des habitations au Maroc*" Thèse d'état, Univ. Med V, Rabat, Maroc (2000) 212p.
- [10] - O.K. Hakam, H. Ben Bouih, H. Nassali, A. Choukri, A. Srhiri, M. Lferde & J.-L. Reyss, "*Qualité des eaux naturelles dans la région de la ville de Kénitra*" *Revue Marocaine de Génie Civile*, 89 (2000) 54-62
- [11] - S. Semghouli, "*Chronologie Th/U des dépôts Quaternaires de carbonates purs et impurs au Maroc.*" Thèse de Doctorat, Université Med V, Rabat, Maroc (2001) 156p.
- [12] - O.K. Hakam, A. Choukri, J.-L. Reyss & M. Lferde, "*Determination and comparison of uranium and radium isotopes activities and activity ratios in samples from some natural water sources in Morocco.*" *Journal of Environmental Radioactivity*, 5 (2001) 175-189
- [13] - R. L. Fleischer & O. G. Raabe, "*Recoiling alpha-emitting nuclei. Mechanisms for uranium series disequilibrium.*" *Geochem. Cosmochim. Acta*, 42 (1978) 973-978.
- [14] - R. L. Fleischer, "Isotope disequilibrium of uranium, alpha-recoil damage and preferential solutions effects." *Science*, 207 (1980) 979-981.
- [15] - M. P. Toulhoat, P. Holliger & J. Ménès, "*Analyses of lead isotopes and U-series disequilibrium in groundwaters and possible source rocks in the west Morvan area (France).*" *Uranium*, 4 (1988) 307-325
- [16] - M. P. Toulhoat & C. Beaucaire, "*Comparison between lead isotopes ²³⁴U/²³⁸U activity ratio and saturation index in hydrogeochemical exploration for concealed uranium deposits.*" *J. Geochem. Explor.*, 41 (1991) 181-196
- [17] - M. P. Toulhoat & C. Beaucaire, "*Géochimie des eaux liées au gisement d'uranium de Cigar Lake (Saskatchewan, Canada) et apport des isotopes de l'uranium et du plomb comme guides de prospection.*" *Proceedings of an NEA Workshop, Paris (France)*, 9-10 Novembre 1992, (1993) 105-110
- [18] - J. N. Andrews, & R. L. F. Kay, "*The U content and ²³⁴U/²³⁸U activity ratio of dissolved uranium in groundwater from some triassic sandstones in England.*" *Isotope Geoscience*, 1 (1983) 101-117