

## Résumé

Les ressources en systèmes hydrothermaux en Algérie sont abondantes, avec plus de 200 sources réparties à travers le nord du pays. Dans ce travail, ce sont 16 sources thermo-minérales du Nord-Ouest de l'Algérie, qui ont fait l'objet de notre étude. La circulation de ces eaux se fait principalement à travers des failles et des fractures. Cette étude est la première enquête sur l'occurrence naturelle des isotopes du Radium et du Radon dans les eaux thermales algériennes. Elle vise à mieux comprendre les contrôles géologiques et hydrogéochimiques des isotopes à vie courte et longue du radium (Ra) et du radon (Rn).

La température de l'eau varie de 29,4 à 69,1°C, tandis que le pH est globalement neutre à faiblement acide pour quelques échantillons. L'analyse hydrochimique a révélé trois types d'eau principaux :  $Cl^- - Na^+$ ,  $SO_4^{2-} - Na^+ - Ca^{2+}$ , et  $HCO_3^- - Ca^{2+} - Mg^{2+}$ . La chimie des eaux est principalement contrôlée par la dissolution des carbonates et des évaporites, en particulier l'halite.

Les concentrations d'activité de Ra et Rn ont été mesurées pour 16 sources thermales à l'aide de techniques de mesure très sensibles (RadeCC et Rad7). Les échantillons ont montré des activités élevées pour le  $^{222}Rn$ , le  $^{224}Ra$  et le  $^{226}Ra$ , avec des valeurs allant jusqu'à  $377 \times 10^3$  Bq/m<sup>3</sup>, 730 Bq/m<sup>3</sup> et 4367 Bq/m<sup>3</sup>, respectivement. Les activités de radionucléides dans les sources thermales du nord-ouest de l'Algérie se sont avérées plus élevées que dans d'autres pays. Le rapport d'activité  $^{228}Ra/^{226}Ra$  indique une origine carbonatée de la radioactivité de l'eau. Le rapport  $^{222}Rn/^{226}Ra$  suggère que les eaux peuvent être mélangées avec des eaux proches de la surface.

Les résultats indiquent que l'excès de  $SO_4^{2-}$  limite la concentration aqueuse de Ba et, par conséquent, les activités élevées de radium dans les systèmes hydrothermaux du nord-ouest de l'Algérie ne sont pas principalement contrôlées par la co-précipitation avec  $BaSO_4$ . Cependant, le  $SrSO_4$  peut partiellement limiter les concentrations du radium dans les eaux. L'abondance minimale de contenu minéral argileux dans l'aquifère, en plus des activités thermiques, améliore considérablement la mobilisation de Ra en solution. Étant donné que ces eaux sont parfois utilisées pour la boisson, 50% des sources étudiées présentent des activités de Ra combiné à longue durée de vie ( $^{226}Ra + ^{228}Ra$ ) dépassant le niveau maximal de contaminant (MCL) de l'OMS et de l'EPA pour l'eau potable.

**Mots clés :** Source thermale ; Hydrochimie ; Nord-Ouest algérien ; Sulfate ; Radioactivité ; Radium ; Radon

## Abstract

The resources of Algeria hydrothermal systems are numerous. More than 200 natural hydrothermal springs are widespread throughout the northern Algerian territory. Hydrothermal resources in Algeria are abundant, with over 200 sources distributed in the north of the country. This study focuses on those located in the northwest of Algeria, which are characterized by a great diversity of geothermal manifestations. The circulation of these waters is mainly through faults and fractures. This study differs from previous hydrogeological studies of thermal waters in Algeria, as it presents the first geochemical investigation into the natural occurrence of radium and radon isotopes in Algerian hydrothermal waters. It aims to understand the geological and hydrogeochemical controls of short- and long-lived radium isotopes.

The water temperature varies from 29.4 to 69.1°C, while the pH is almost neutral to slightly acidic for some samples. Hydrochemical analysis revealed three main types of water:  $Cl^- - Na^+$ ,  $SO_4^{2-} - Na^+ - Ca^{2+}$ , et  $HCO_3^- - Ca^{2+} - Mg^{2+}$ . The chemistry of the waters is mainly controlled by the dissolution of carbonates and evaporites, particularly halites.

Activity concentrations of Ra and Rn were measured for 16 hydrothermal sources using highly sensitive measurement techniques (RadeCC and Rad7). The samples showed high activities for  $^{222}Rn$ ,  $^{224}Ra$ , and  $^{226}Ra$ , with values up to  $377 \times 10^3$  Bq/m<sup>3</sup>, 730 Bq/m<sup>3</sup>, and 4367 Bq/m<sup>3</sup>, respectively. Radionuclide activities in hydrothermal sources in northwest Algeria were found to be higher than in other countries. The  $^{228}Ra/^{226}Ra$  activity ratio indicates a carbonate origin of water radioactivity. The  $^{222}Rn/^{226}Ra$  ratio suggests that the waters may be mixed with shallow groundwater.

The results indicate that excess  $SO_4^{2-}$  limits the aqueous concentration of Ba and, therefore, the high radium activities in hydrothermal systems in northwest Algeria are not primarily controlled by co-precipitation with  $BaSO_4$ . However,  $SrSO_4$  may partially limit radium concentrations in the waters. The minimal abundance of clay mineral content in the aquifer, in addition to thermal activities, significantly enhances Ra mobilization into solution. As these waters are sometimes used for drinking, 50% of the studied sources exhibit combined long-lived Ra ( $^{226}Ra + ^{228}Ra$ ) activities exceeding the maximum contaminant level (MCL) of WHO and EPA for drinking water.

**Keywords:** Hydrothermal spring; Hydrochemistry ; Sulfate ; Northwestern Algeria ; Radioactivity ; Radium ; Radon

## المخلص

تتعدد موارد الأنظمة الحرارية المائية في الجزائر. ينشر أكثر من 200 منبع طبيعي مائي معدني حراري في جميع أنحاء التراب الجزائري الشمالي. هذه الدراسة ركزت على تلك الموجودة في الجزء الشمالي الغربي من الجزائر الذي يتميز بالعديد من مظاهر الطاقة الحرارية الأرضية. يتم تصريف هذه المياه من العمق إلى السطح بشكل أساسي عبر الصدوع والكسور. يشكل غير مألوف عن الدراسات الهيدروجيولوجية للمياه الحرارية في الجزائر، تختلف هذه الدراسة لهذه الموارد نوعاً ما. يقدم هذا العمل أول تحقيق جيوكيميائي عن التواجد الطبيعي لنظائر الراديوم والرادون في المياه الحرارية المائية الجزائرية. تهدف الدراسة إلى فهم الضوابط الجيولوجية والهيدروجيائية للنظائر قصيرة العمر وطويلة العمر للراديوم (الرادون 222، الراديوم 223، الراديوم 224، الراديوم 226 والرادون 228). تتراوح درجة حرارة الماء من 29.4 إلى 69.1، وبالنسبة لغالبية العينات يكون الرقم الهيدروجيني للماء قريباً من الحياد. كشفت التحليل الهيدروجييميائي للماء عن ثلاثة أنواع رئيسية من الماء مياه كلورية، مياه كبريتية ومياه بيكربونات. يتم التحكم في كيمياء المياه بشكل أساسي عن طريق إذابة الكربونات والمتبخرات.

تم استخدام تقنيات قياس عالية الحساسية للكشف عن أنشطة الرادون والراديوم (Rad و RadeCC) لسعة عشر منبع مائي معدني حراري. أظهرت العينات أنشطة عالية لا سيما بالنسبة للرادون 222، الراديوم 224 والراديوم 226 (حتى  $377 \times 10^3$  بيكريل / م<sup>3</sup> و 730 بيكريل / م<sup>3</sup> و 4367 بيكريل / م<sup>3</sup> على التوالي). تتفق أنشطة النويدات المشعة في النبايع الحرارية المائية في شمال غرب الجزائر أنشطة النبايع الحرارية الأخرى في العالم. الاختلال الإشعاعي بين العناصر باستخدام نسبة نشاط الراديوم والرادون كبير نسبياً، مما يشير إلى تأثير جيولوجيا الخزان على تراكيز النشاط الإشعاعي. نفس الشيء مع نتيجة الذوبان الكيميائي، تشير نسبة الراديوم 228/الراديوم 226 إلى أصل الصخور الكربونية للنشاط الإشعاعي للماء. الراديوم 226 يمكن أن يتفاعل كيميائياً عكس الرادون، والذي يمكن أن يتسرب بسرعة من خلال الكسور. تشير نسب الرادون 222/الراديوم 226 إلى أنه يمكن خلط المياه الحرارية مع المياه القريبة من السطح. يشير الارتباط الملحوظ بين نظائر الراديوم وملوحة المياه إلى أن عمليات الامتزاج / الامتصاص لا تتحكم في توزيع الراديوم في المياه. تظهر النتائج إلى أن الكبريتات الزائدة تحد من التركيز المائي للباريوم، وبالتالي، فإن أنشطة الراديوم المرتفعة في شمال غرب الجزائر لا يتم التحكم فيها بشكل أساسي عن طريق الترسيب المشترك مع الباريوم. ومع ذلك، قد يحد السيليسين جزئياً من تراكيز الراديوم في المياه. من المحتمل أن تهيمن عملية الارتداد للنويدات الأم في المواد الصلبة للخزان الجوفي على أنشطة الراديوم. إن الحد الأدنى من وفرة المحتوى المعدني الطيني في الخزان الجوفي بالإضافة إلى الأنشطة الحرارية يعزز بشكل كبير من تعبئة الراديوم في المحلول. من وجهة نظر صحية ونظراً لاستخدام هذه المياه في بعض الأحيان للشرب، فإن 50% من النبايع التي تم فحصها أظهرت أنشطة من الراديوم طويل العمر المشترك (الراديوم 226 + الراديوم 228) بما يزيد عن الحد الأقصى لمستوى الملوثات (MCL) لمنظمة الصحة العالمية ووكالة حماية البيئة لمياه الشرب. تم اقتراح نموذج مفاهيمي يلخص العوامل الرئيسية التي تتحكم (الحد / التعزيز) للنويدات المشعة للأنظمة الحرارية المائية في شمال غرب الجزائر.

**الكلمات المفتاحية:** منبع مياه معدنية حارة ؛ الكبريتات ؛ هيدروجيوكيمياء ؛ النشاط الإشعاعي ؛ الراديوم ؛ الرادون ؛ شمال غرب الجزائر