



RAPPORT D'ETUDE

Etude de la répartition de radionucléides artificiels
émetteurs gamma entre une usine
de dépollution et son milieu environnant ;
*Cas de la station d'épuration
du District du Grand Caen.*

DEMANDEUR : AGENCE DE L'EAU SEINE-NORMANDIE <i>DIRECTION REGIONAL DE ROUEN</i> 4, RUE DU GRAND FEU 76176 ROUEN Tel : 01 43 19 36 36 / Fax : 01 43 19 48 69	DATE édit.: 21/06/00
	VERSION : 02
REALISATION : A.C.R.O. 138 rue de l'Eglise 14 200 HEROUVILLE St CLAIR Tél : 02.31.94.35.34 / Fax : 02.31.94.85.31	Nb. PAGE : 56 (HORS ANNEXE)
	FOLIO : 1
	CONTRAT : 99.97.031
	AUTEUR(S) : MYLENE JOSSET GILBERT PIGREE

Résumé :

Hors industrie nucléaire, diverses structures (hospitalières, de recherche ou industrielles) peuvent avoir recours à l'utilisation de radio-isotopes conditionnés sous forme « non scellés ». De telles pratiques conduisent à tolérer des rejets dans l'environnement dans le respect d'un dispositif réglementaire. Ainsi le réseau collectif peut contenir des radio-isotopes dont le devenir va dépendre en partie de l'épuration appliquée aux eaux usées. Cette étude, à travers l'analyse d'un cas concret, a pour objectif de renseigner sur le devenir des radioéléments γ présents dans les eaux usées traitées par une station d'épuration.

Dans ce but, un suivi analytique d'une durée de cinq mois a été mis en place sur la station Mondeville du District du Grand Caen. Les eaux usées brutes et traitées, les boues de décantation et le milieu aquatique recevant les effluents traités ont fait l'objet d'analyses régulières. D'autres mesures ont également été faites afin de préciser le rôle joué par les différents ouvrages de traitement.

Les résultats acquis soulignent la présence en entrée de la station de radioéléments artificiels émetteurs gamma utilisés à des fins d'actes diagnostics ou thérapeutiques en médecine nucléaire. La contamination du réseau est essentiellement due au ^{99m}Tc et à l' ^{131}I , radioéléments présents quelque soit le jour ouvré et l'heure considérés. La charge totale entrante estimée pour une journée est importante, de l'ordre de 4000 MBq pour ^{99m}Tc et de 15 à 300 MBq pour ^{131}I . Le bilan d'épuration de la station montre que celle-ci joue un rôle vis à vis de cette pollution à travers ces étapes de traitement. Au sein du milieu naturel recevant les eaux traitées, seule la présence de ^{131}I est observée.

Mots clés :

STATION D'EPURATION – RESEAU COLLECTIF – EAUX USEES BRUTES – EAUX USEES TRAITÉES
– BOUES DE DECANTATION – SOURCE NON SCÉLÉE – MEDECINE NUCLEAIRE –
RADIOELEMENTS ARTIFICIELS – EMETTEUR GAMMA – TECHNETIUM 99M – IODE 131 –
IODE 123 – GALLIUM 67 – THALLIUM 201 – INDIUM 111.

Remerciements :

Nous tenons à remercier :

Le District du Grand Caen représenté par Monsieur DESNEUX qui a accueilli favorablement cette étude.

Monsieur NICOLET, responsable de la Station du District du Grand Caen, ainsi que Monsieur BOUISSET, adjoint au responsable, pour leur accueil, leur conseil et les moyens mis à notre disposition pour faciliter nos interventions sur le site.

L'ensemble du personnel de la station Mondeville pour le soutien logistique tout au long de cette étude.

Monsieur Hervé LEMOUTON, de l'Agence de l'Eau Seine-Normandie, direction de secteur Bocages Normands, pour ses nombreux conseils et la lecture assidue de ce document.

Le laboratoire de Géomorphologie (CNRS de Caen,) et en particulier, le Docteur BRUN-COTTAN, pour la réalisation des analyses de granulométrie et de carbone organique total.

Sommaire :

RESUME :	2
MOTS CLES :	2
REMERCIEMENTS :	3
SOMMAIRE :	4
I. INTRODUCTION	6
II. PRESENTATION DE L'ETUDE	8
A - OBJECTIF.....	8
B – ARTICULATION DE L'ETUDE.....	8
C – MESURES EFFECTUEES	9
D - PRESENTATION DE LA STATION D'EPURATION.....	11
III. PRESENTATION DES RESULTATS ET DISCUSSION	14
A – INVENTAIRE DES RADIOELEMENTS GAMMA CONTENUS DANS LES EFFLUENTS BRUTS A L'ENTREE DE LA STATION.....	15
1) <i>Aspect qualitatif</i>	15
2) <i>Variation des activités entrantes</i>	17
3) <i>Problème de variabilité des résultats lié à la décroissance radioactive</i>	24
4) <i>Evaluation du flux journalier de pollution radioactive</i>	25
5) <i>Synthèse</i>	28
B – INVENTAIRE DES RADIOELEMENTS GAMMA CONTENUS DANS LES EFFLUENTS TRAITES	29
1) <i>Aspect qualitatif et quantitatif</i>	29
2) <i>Bilan sortie / entrée</i>	30
3) <i>Synthèse</i>	32
C – REPARTITION DES RADIOELEMENTS GAMMA A L'INTERIEUR DE LA STATION D'EPURATION.	33
1) <i>Le prétraitement</i>	33
2) <i>Le traitement</i>	35
3) <i>Incinération des boues</i>	39
4) <i>Les « retours en tête »</i>	42
5) <i>Synthèse</i>	44
D – INVENTAIRE DES RADIOELEMENTS GAMMA PRESENTS DANS LE MILIEU AQUATIQUE RECEVANT LES EAUX TRAITES	45
1) <i>L'Orne en amont et en aval de l'émissaire de rejet de la station d'épuration</i> :	45
2) <i>Canal de navigation</i>	48
IV. DISCUSSION ET CONCLUSION	50
BIBLIOGRAPHIE	54

ANNEXE I : Méthodologie

- A - MATERIELS
- B - PROCEDURES
- C - EXPRESSION DES RESULTATS
- D - LES CONTAMINANTS RADIOACTIFS RECHERCHES
- E - PROBLEMES LIES A LA DECROISSANCE RADIOACTIVE

ANNEXE II :

- I - IDENTIFICATION DES ECHANTILLONS COLLECTES DANS L'ENVIRONNEMENT

ANNEXE III :

- III.1 - TENEURS EN RADIOELEMENTS EMETTEURS GAMMA D'ORIGINE ARTIFICIELLE ET A VOCATION MEDICALE
- III.1 BIS - TENEURS (EN BQ/KG SEC) EN RADIOELEMENTS EMETTEURS GAMMA D'ORIGINE ARTIFICIELLE ET A VOCATION MEDICALE POUR LES ECHANTILLONS DE BOUES
- III.2 - TENEURS EN RADIOELEMENTS EMETTEURS GAMMA D'ORIGINE ARTIFICIELLE AUTRES QUE CEUX A VOCATION MEDICALE
- III.3 - TENEURS EN BE-7 ET K-40 (RADIOELEMENTS D'ORIGINE NATURELLE)

1. Introduction

Hors industrie nucléaire, diverses structures (hospitalières, de recherche ou industrielles) peuvent avoir recours à l'utilisation de radio-isotopes. Conditionnés sous forme gazeuse ou plus fréquemment liquide, ces radioéléments constituent des sources dites « non scellées ». Leur emploi dans des conditions normales ne permet pas de prévenir la dispersion des radio-isotopes dans l'environnement. De telles pratiques conduisent à tolérer des rejets dans l'environnement dans le respect, par les utilisateurs, d'un dispositif réglementaire. La réglementation prévoit des autorisations pour l'élimination des effluents liquides qui ne sont pas de même nature selon que l'installation relève du secteur « application médicale » ou du secteur « hors application médicale » (recherche et industrie non nucléaire). Suite à l'utilisation de ces « sources non scellées », les eaux usées collectées par le réseau d'assainissement, peuvent contenir des radio-isotopes de nature et de comportement physico-chimique très variés. A l'intérieur de la station d'épuration ces radio-toxiques, sont susceptibles d'être libérés d'une part, dans l'atmosphère au cours des opérations de traitement et d'autre part, dans l'environnement avec les eaux traitées ou avec les boues de décantation en fonction de leur devenir : entreposage, épandage ou incinération.

Lors d'une précédente étude¹, l'ACRO a pu souligner la présence d'un radioélément, l'iode 131, utilisé couramment en milieu hospitalier, dans les sédiments de l'Orne en aval du rejet de la station d'épuration. De cette constatation il a été suggéré que son origine pourrait être liée aux pratiques médicales. En effet, dans le cas de la ville de Caen, des installations (hôpitaux, cliniques, centres de recherche) disposant d'une autorisation de rejet d'effluents liquides radioactifs sont raccordées au réseau d'assainissement. L'¹³¹I, introduit dans le réseau d'assainissement soit par les hôpitaux, soit par les patients eux-même *via* leurs urines et selles, serait en partie libéré dans le milieu aquatique avec les effluents traités de la station. Il s'agirait là d'une source qualifiée de « diffuse » en raison des lieux multiples qui constituent son origine.

Dans le cadre du point radiologique zéro, réalisé par l'ACRO² au profit du District de Poitiers, des radioéléments utilisés en milieu hospitalier avaient été décelés dans les effluents bruts à

¹ Etude de la qualité radiologique des eaux marines et continentales du littoral normand ; AESN/ACRO ; 1997.

² Etude réalisée par l'ACRO à la demande du district de Poitiers en 1997.

l'entrée de la station d'épuration de la région. Cette présence a ensuite été confirmée par l'analyse des boues de décantation de la station.

De même l'OPRI³ [OPRI 1997/98] a été conduit à intervenir ces dernières années sur des problèmes liés à la présence de radioactivité d'origine médicale dans les déchets solides, les eaux usées ou les boues d'usines de traitement.

On peut donc se demander quel est le rôle d'une station d'épuration à l'égard de la charge radioactive qui transite par le réseau. Pour cela, il était intéressant d'étudier un cas concret, celui de la station d'épuration du District du Grand Caen, afin de suivre le devenir des radioéléments dans chacune des étapes de traitement jusqu'au rejet des effluents traités dans le milieu naturel.

³ Office de Protection contre les Rayonnements Ionisants.

II. Présentation de l'étude

A - Objectif

Nous avons choisi de placer l'accent sur le devenir des radio-toxiques à l'intérieur d'une usine de dépollution (station d'épuration des eaux du District du Grand Caen) et leur contribution au marquage radioactif du milieu aquatique qui reçoit les eaux traitées. Dans ce contexte, une recherche de radioéléments artificiels émetteurs gamma (γ) est menée à la fois à l'intérieur de la station d'épuration et dans le milieu aquatique qui reçoit les eaux traitées.

B – Articulation de l'étude

Globalement, le projet s'articule autour des axes suivants :

- **à l'interface réseau d'assainissement / station d'épuration**

- inventaire des radio-toxiques γ contenus dans les eaux brutes.
- évaluation des variations d'activités journalières et horaires dans les eaux brutes.
- estimation de la charge entrante en polluants radioactifs.

- **à l'interface station d'épuration / milieu aquatique**

- inventaire des radio-toxiques γ contenus dans les eaux traitées.
- estimation de la charge sortante en polluants radioactifs rejetée dans le milieu naturel.
- bilan sortie / entrée sur les radio-toxiques émetteurs gamma contenus dans les effluents.

- **au sein de la station d'épuration**

Etude du devenir des radio-toxiques γ au travers des différents processus de traitement :

- rôle des étapes de prétraitement
- répartition boues / eaux
- rôle de la digestion des boues
- rôle de la filière d'incinération
- rôle des différentes interconnexions

- **dans le milieu aquatique continental**

- évaluation de la répercussion des rejets de la station en aval des émissaires.
- évaluation d'éventuels apports, décelés en amont de l'émissaire, pouvant contribuer à une augmentation de la radioactivité artificielle.

C – Mesures effectuées

Pour mener cette étude, un suivi d'une durée de 22 semaines a été mis en place dès le mois de juin 1999 afin que les valeurs obtenues traduisent au mieux la réalité, tant dans la moyenne que dans les variations.

A l'intérieur de la station, ce suivi, à caractère bi-mensuel, a concerné les eaux usées brutes et traitées (avant rejet en milieu naturel) et les boues de décantation après digestion. Dans le milieu naturel, sédiments et végétaux aquatiques ont fait l'objet d'une surveillance mensuelle, à la fois en amont et en aval de l'émissaire de rejet dans l'Orne.

De nombreuses analyses (à caractère ponctuel) ont également été faites à l'intérieur de la station. Leur objet était de renseigner sur le rôle joué par les différents processus de traitement sur le devenir des radiotoxiques contenus dans les eaux et les boues.

Le détail des prélèvements (nature, type, lieu, modalités, dates ...) est présenté dans l'annexe II.

Un résumé des investigations menées est présenté dans le tableau II.1.

Parmi l'ensemble des radio-toxiques pouvant être manipulés en source non scellée, ce sont les radioéléments artificiels émetteurs d'un rayonnement gamma (γ) qui ont été recherchés ; ils ont été mesurés par spectrométrie gamma.



Photo 1 : *Préleveur automatique en position à l'entrée de la station (avant prétraitement).*

Tableau II.1 : Bilan des investigations menées dans le cadre de l'étude

Nature	Lieu de prélèvement	Cadre	Type de collection	Durée de collection	Analyse effectuée	Total des analyses
DANS LA STATION D'EPURATION						
eaux usées brutes	entrée de la station (avant prétraitement)	caractérisation des variations d'activité par tranches horaires	asservie au temps	sur tranche horaire	radioactivité gamma	44
		suivi bi-mensuel	asservie au débit	sur 24 h (9h à 9h)	radioactivité gamma	10
		mesures complémentaires au suivi	asservie au temps	2 litres / heure	radioactivité gamma	3
		mesures complémentaires au suivi	asservie au débit	sur 24 h (9h à 9h)	radioactivité gamma	4
eaux usées traitées	bassin de rétention (avant rejet)	suivi bi-mensuel	asservie au débit	sur 24 h (9h à 9h)	radioactivité gamma	10
		mesures complémentaires au suivi	asservie au débit	sur 24 h (9h à 9h)	radioactivité gamma	3
boues de décantation épaissies et digérées	sortie des centrifugeuses	suivi bi-mensuel	manuelle (1 aliquote / heure)	sur un cycle d'incinération	radioactivité gamma	10
		vérification de l'homogénéité des échantillons	manuelle (1 aliquote / heure)	sur 3 à 6h	radioactivité gamma	3
boues de décantation épaissies	sortie des centrifugeuses	rôle de la digestion des boues	manuelle (1 aliquote / heure)	sur un cycle d'incinération	radioactivité gamma	2
sable résidus de prétraitement	étape de dessablage	rôle du prétraitement	manuelle (1 aliquote / heure)	sur une journée	radioactivité gamma	1
graisse résidus de prétraitement	étape de déshuilage	rôle du prétraitement	manuelle (1 aliquote / heure)	sur une journée	radioactivité gamma	1
eaux de lavage des fumées	sortie de l'incinérateur	rôle de l'étape d'incinération	manuelle (1 aliquote / heure)	sur un cycle et ponctuelle	radioactivité gamma	4
cendres	sortie de l'incinérateur	rôle de l'étape d'incinération	manuelle (1 aliquote / heure)	sur un cycle	radioactivité gamma	2
sable lit d'incinération	dans le four	rôle de l'étape d'incinération	manuelle	ponctuelle	radioactivité gamma	1
retours en tête : fraction eau	bassin de répartition répartiteur 1	rôle des retours en tête	asservie au temps	sur tranche horaire (1 / heure)	radioactivité gamma	1
retours en tête : fraction boue	bassin de répartition répartiteur 1	rôle des retours en tête	asservie au temps	sur tranche horaire (1 / heure)	radioactivité gamma	1
DANS LE MILIEU AQUATIQUE HORS STATION :						
végétaux aquatiques	Orne en amont de Caen (Fleury/Orne)	suivi mensuel	manuelle	ponctuelle	radioactivité gamma	5
sédiments	Orne en aval du point de rejet de la station (300m)	suivi mensuel	manuelle	ponctuelle	radioactivité gamma granulométrie C.O.T.	15
algues aquatiques	canal de navigation ; en aval du point de rejet de la station	mesures ponctuelles	manuelle	ponctuelle	radioactivité gamma	2

D - Présentation de la station d'épuration

La station d'épuration choisie répond aux objectifs de cette étude puisque des installations (hôpitaux, cliniques, centres de recherche), disposant d'une autorisation de rejet d'effluents liquides radioactifs, sont raccordées au réseau d'assainissement de la ville.



Photo 2 : *Station d'épuration du District du Grand Caen*

Construite en 1978, la station d'épuration dénommée « Mondeville » est exploitée par OTV (Omnium Traitement et Valorisation) pour le compte du District du Grand Caen. Une trentaine de communes y sont raccordées, sa capacité est de 270 000 Equivalent Habitant.

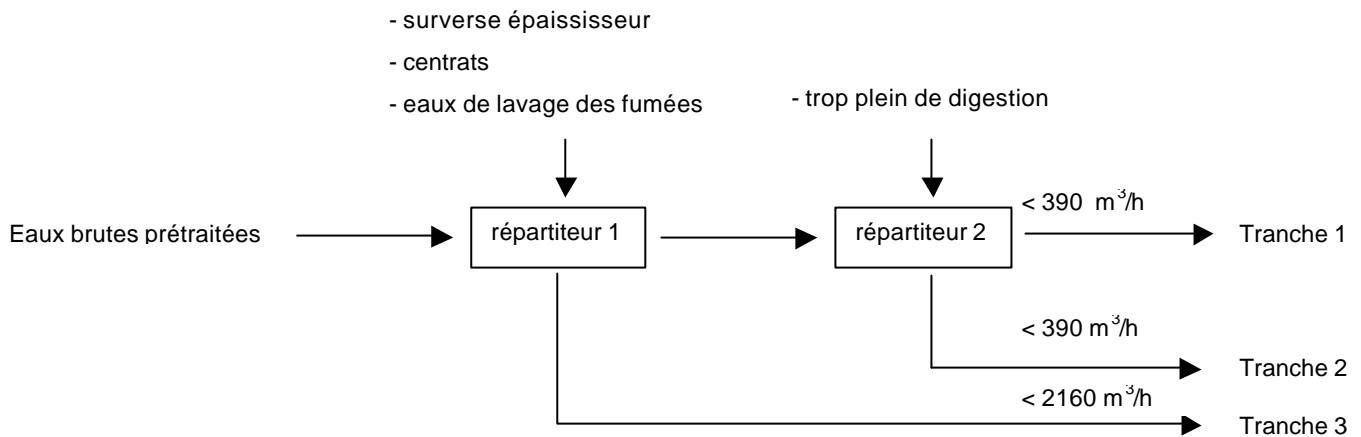
La station possède une filière de traitement des eaux qui se compose de trois tranches à réacteurs biologiques et une filière de traitement des boues conduisant à leur élimination sur site par incinération après digestion.

Les volumes d'eaux traitées sont de 37000 m³ en moyenne par jour. En temps normal 15 tonnes de boues fraîches sont produites par jour et 2 tonnes de trop plein retournent en tête. Les débits sont mesurés en sortie sur chacune des trois tranches. Le niveau de rejet nécessite que ces débits soient limités à 390 m³/h sur les tranches 1 et 2 et 2160 m³/h sur la tranche 3. La station, dont le réseau est de type séparatif, ne traite pas les eaux pluviales, cependant *via* des connections inter dépendantes, celles-ci peuvent entraîner des débits de pointe, à l'entrée de la station, atteignant 4000 m³/h.

Le rejet des eaux traitées est effectué dans l'Orne mais des rejets peuvent être réalisés exceptionnellement dans le canal de navigation à la demande de la direction départementale de l'équipement afin d'en maintenir le niveau.

a) Filière de traitement des eaux

Dès son arrivée en tête de station, l'effluent brut provenant du réseau d'assainissement, va être prétraité. Les différentes étapes sont le dégrillage, le dessablage et le déshuilage. Les effluents prétraités sont ensuite envoyés sur un ou deux répartiteurs pour être conduits vers l'une des tranches de traitement : le répartiteur 1 alimente directement la tranche 3, le passage par le répartiteur 2 sert à l'alimentation des tranches 1 et 2 (voir schéma ci dessous).



Les répartiteurs récupèrent également les « retours en tête » : la surverse de l'épaisseur, les centrats et les eaux de lavage des fumées retournent ainsi vers le répartiteur 1; le trop plein de digestion retourne vers le répartiteur 2.

Les résidus issus du prétraitement sont envoyés en décharge autorisée.

Les trois tranches fonctionnent sous le même principe : décanteur primaire, bassin d'aération (traitement biologique), clarificateur puis bassin de rétention avant rejet, ce dernier ouvrage étant commun aux trois tranches.

b) Traitement biologique

Les réacteurs biologiques des tranches 1 et 2 sont basés sur le procédé oxy-tubes. De l'air pressurisé injecté au fond du bassin est libéré sous forme de fines bulles. La concentration moyenne en O_2 est de 2 à 3 mg par litre d'effluent en cours de traitement.

Pour la tranche 3, le bassin d'aération est constitué d'un réacteur biologique couvert avec injection d'air enrichi en O_2 (teneur supérieure à 80%). La concentration en O_2 atteint 8 à 10 mg par litre d'effluent.

L'excès de boues biologiques est injecté dans le décanteur primaire de la tranche. Les boues évacuées du décanteur représentent un mélange de boues biologiques et boues primaires.

c) Filière de traitement des boues

Le traitement des effluents bruts s'accompagne d'une filière de traitement des boues primaires (provenant des effluents bruts après décantation) et des boues biologiques (boues activées provenant du traitement biologique).

Les boues extraites sont dirigées vers un seul épaisseur commun aux trois tranches. L'épaisseur recueille également les matières de vidange (de provenance externe) déchargées dans la surverse puis rejetées vers le répartiteur 1. Les graisses d'origine externe sont, quant à elles, introduites au niveau de l'étape de centrifugation après être passées dans un dégraisseur.

Les boues sont ensuite dirigées vers un des trois digesteurs primaires. La digestion s'accompagne de l'apparition de gaz méthane qui sera utilisé comme combustible pour l'incinération.

Du digesteur primaire, les boues sont transférées vers les digesteurs secondaires (au nombre de deux), qui permettent leur stockage ainsi que celui du gaz, en attente de déshydratation puis d'incinération. Le temps de séjour total des boues durant l'étape de digestion est en moyenne de 25 à 30 jours.

Au cours de l'étape de centrifugation, un polymère est injecté afin d'améliorer la stabilité des boues. La quantité de polymère utilisée est de 8 à 8,5 kg par tonne de matière sèche en cas de traitement de matière de vidange et de 6 à 7 kg par tonne de matière sèche en fonctionnement normal.

En sortie, la siccité des boues est de 26 %, grandeur suffisante pour garantir leur combustion. Les concentrats sont rejetés en tête de station vers le répartiteur 1.

L'incinération des boues s'effectue sur un lit de sable fluidifié. La température de chauffe est de 600 à 700°C. Un procédé de lavage des fumées conduit à la production d'effluents chargés en cendres dirigés vers une lagune. L'eau de lavage provient du bassin de rétention des eaux traitées avant rejet. Le temps de remplissage d'une lagune par les cendres couvre trois semaines. Après égouttage, les cendres sont placées en décharge autorisée. Les eaux de drainage des lagunes sont renvoyées en tête de station vers le répartiteur 1.

Le fonctionnement de l'incinérateur s'effectue sur un cycle journalier de 12 heures.

Les synoptiques⁴ des différentes étapes de traitements sont représentés figures II.1 et II.2 ; les lieux et natures des prélèvements effectués y sont précisés.

⁴ Source : Agence de l'eau Seine-Normandie - Direction de Secteur Bocages Normands.

III. Présentation des résultats et discussion

Les annexes II.1 et II.2 présentent les teneurs en radioéléments émetteurs gamma, d'origines artificielles à vocation médicale (II.1) ou non (II.2), mesurées dans les échantillons collectés. Seuls les radioéléments les plus courants sont rapportés.

L'annexe II.1 bis présente les teneurs en radioéléments émetteurs gamma, d'origine artificielle à vocation médicale et rapportées au poids sec des échantillons. Ces résultats ne concernent que les échantillons de boues analysés.

L'annexe II.3 présente les teneurs en potassium 40 (^{40}K) et béryllium 7 (^7Be), radioéléments d'origine naturelle mesurés dans les divers échantillons collectés.

Concernant la présentation des résultats, elle est faite par compartiments étudiés, préalablement regroupés selon les interventions suivantes :

Dans l'environnement de la station d'épuration

- Etude des variations des activités en entrée :
 - caractérisation des variations journalières d'activités des eaux usées brutes
 - caractérisation des variations horaires d'activités des eaux usées brutes
- Suivi analytique bimensuel :
 - suivi bimensuel des boues épaissies et digérées
 - suivi bimensuel des eaux usées brutes en entrée de la station
 - suivi bimensuel des eaux usées traitées avant rejet dans le milieu naturel
- Mesures ponctuelles :
 - contrôles ponctuels des eaux usées brutes et traitées
 - contrôles ponctuels des boues épaissies
 - contrôles ponctuels des boues épaissies et digérées
 - contrôles ponctuels des retours en tête
 - contrôles ponctuels des résidus d'incinération
 - contrôles ponctuels des eaux de lavage des fumées

Dans le milieu aquatique, hors station d'épuration

- Suivi mensuel :
 - de l'Orne en amont de Caen
 - de l'Orne en aval de l'émissaire de rejet
- Mesures ponctuelles :
 - contrôles ponctuels dans le canal de navigation en aval de l'émissaire de rejet

A – Inventaire des radioéléments gamma contenus dans les effluents bruts à l'entrée de la station

1) Aspect qualitatif

Sur l'ensemble des prélèvements effectués sur les eaux usées brutes à l'entrée de la station, six radioéléments artificiels sont identifiés. Il s'agit, par ordre de fréquence d'observation, du technétium 99 métastable (^{99m}Tc), puis de l'iode 131 (^{131}I), du thallium 201 (^{201}Tl), de l'iode 123 (^{123}I) et du gallium 67 (^{67}Ga). On ajoutera enfin l'indium 111 (^{111}In), identifié dans un échantillon d'eau lors de la caractérisation des variations horaires des activités en entrée et observé également dans les boues de décantation.

Tableau III.1 : Inventaire des radioéléments identifiés dans les eaux usées brutes en entrée de la station Mondeville ; la période radioactive et la fréquence d'observation lors du suivi-bimensuel de juin à octobre 1999 sont précisées pour chacun.

Radioélément	Ga-67	Tc-99m	I-123	I-131	Tl-201	In-111
Période	3,26 j	6,0 h	13,2 h	8,0 j	3,0 j	2,8 j
Fréquence	1 / 10	10 / 10	2 / 10	7 / 10	4 / 10	0 / 10

L'ensemble de ces radioéléments sont utilisés dans les services de médecine Nucléaire soit à des fins thérapeutiques, soit dans un but de diagnostic «in vivo ». Il est clair que dans le premier cas de figure, les activités mises en œuvre sont nettement plus importantes.

Ainsi à titre d'exemple, ^{131}I est utilisé à la fois pour des actes thérapeutiques (traitement de cancers thyroïdiens, hyperthyroïdies) et pour des actes de diagnostic (examen de la thyroïde). ^{99m}Tc , est quand à lui largement utilisés pour de nombreux diagnostics⁵ (explorations fonctionnelles et scintigraphies de nombreux organes).

⁵ Globalement pour les services de médecine nucléaire ^{99m}Tc est utilisé dans près de 90% des actes diagnostiques.

Les produits radioactifs injectés sont très souvent liés à un « vecteur » (molécule, particule) présentant une spécificité pour un organe ou une grande fonction physiologique. Aussi, on parle généralement de « produits radio-pharmaceutiques ». De la nature de ce vecteur dépendra alors, la forme physico-chimique du radioélément.

Afin de préciser cet aspect, une mesure pratiquée sur eau brute et eau filtrée (0,45µm) laisse présager que le ^{99m}Tc est essentiellement sous forme soluble : 59 Bq/L dans l'eau filtrée pour 89 Bq/L dans l'eau brute. Cette constatation valable pour un radioélément ne peut être généralisée car elle va dépendre de la nature chimique des éléments concernés ou des « vecteurs » associés.

On notera enfin, que les périodes radioactives (temps au bout duquel la moitié de la quantité d'un radioélément s'est désintégrée) des radioéléments identifiés sont relativement courtes, de quelques heures à 8 jours.

2) Variation des activités entrantes

Pour mesurer l'activité des radioéléments présents nous devons tenir compte des pertes liées au phénomène de décroissance radioactive. Ces pertes sont d'autant plus importantes que la période du radioélément concerné est courte. Ainsi dans le cas d'un échantillon dont la durée de collection s'étend sur plusieurs heures, les concentrations mesurées ne sont représentatives que de l'état final de l'échantillon. Pour accéder à des activités « instantanées », il serait nécessaire de connaître les heures d'arrivée des radioéléments afin d'estimer les pertes par désintégration.

Dans le cadre de ce travail, nous rapporterons par défaut les concentrations à la fin de collection de l'échantillon, ne connaissant pas a priori les heures d'apparition des polluants radioactifs à l'entrée de la station.

Lorsque cela sera nécessaire, nous tenterons d'estimer les pertes par décroissance. Pour cela, nous poserons les hypothèses adaptées à chaque cas.

a) suivi bi-mensuel

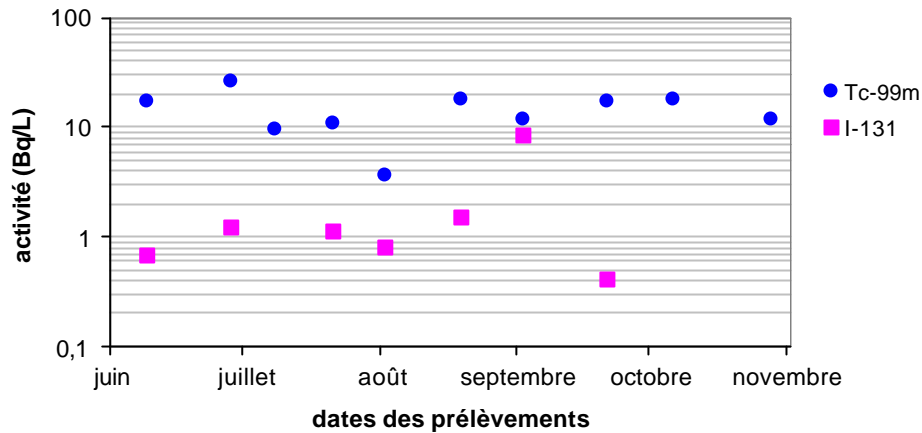
Le suivi des effluents bruts à l'entrée de la station, mis en place de juin à octobre 1999, s'est appuyé sur l'autocontrôle effectué par l'exploitant de la station d'épuration. Les échantillons analysés correspondent à des prélèvements moyens sur 24h en fonction du débit. La nature des radioéléments identifiés, ainsi que leur concentration (Bq/L) sont présentés dans le tableau III.2.

Tableau III.2 : Gamme de variation (et fréquence d'observation) des teneurs (Bq/L) en radioéléments artificiels γ mesurées dans les eaux usées en entrée de la station Mondeville lors du suivi bi-mensuel de juin à octobre 1999.

Radioélément	Ga-67	Tc-99m	I-123	I-131	Tl-201
<i>période</i>	3,26 j	6,0 h	13,2 h	8,0 j	3,0 j
Activité (Bq/L) MIN – MAX	4,3	3,7 - 26	0,7	0,4 – 8,3	0,4 – 0,9
<i>Fréquence</i>	1 / 10	10 / 10	2 / 10	7 / 10	4 / 10

^{99m}Tc est décelé dans tous les échantillons avec l'activité volumique la plus importante (entre 3,7 et 26 Bq/L). On note ensuite la présence de ^{131}I dans 7 échantillons sur 10 avec une concentration variant de 0,40 à 8,3 Bq/L ; ^{123}I et ^{201}Tl ne sont que rarement identifiés et les concentrations restent inférieures à 1 Bq/L. Enfin, ^{67}Ga est décelé dans un seul échantillon avec une activité volumique de 4,3 Bq/L. Les teneurs en ^{99m}Tc et ^{131}I mesurées au cours des cinq mois de suivi sont représentées sur la figure III.1.

Figure III.1 : Teneurs (Bq/L) en ^{99m}Tc et ^{131}I mesurées dans les eaux usées à l'entrée de la station Mondeville au cours du suivi bimensuel (de juin à octobre 1999)



Pour ^{99m}Tc , la dispersion des résultats est relativement faible ; l'essentiel des teneurs sont comprises entre 10 et 20 Bq/L.

Les prélèvements ont concerné tour à tour chaque jour ouvrable de la semaine. A la vue des résultats, il ne semble pas exister de corrélations entre le jour de la semaine et la concentration relevée.

b) variations des activités entrantes par tranches horaires

- caractérisation sur une semaine

Afin de mieux cerner l'évolution de la contamination des eaux usées en entrée, des mesures ont été effectuées en fonction de différentes tranches horaires sur la journée.

Les prélèvements ont été effectués sur une période de 24 h, découpée en tranches horaires en fonction d'informations sur les débits fournies par l'exploitant de la station et en fonction des habitudes quotidiennes attendues des utilisateurs du réseau collectif. Afin que les résultats obtenus pour une journée ne soient pas isolés, l'opération a été répétée durant une semaine.

L'étude s'est déroulée sur cinq jours, du jeudi 27 mai au mercredi 5 juin 1999, à raison de 4 à 6 échantillons journaliers prélevés à l'aide d'un collecteur asservi au temps.

Les résultats sont présentés dans le tableau III.3 ; lorsque le radioélément concerné n'a pas été décelé, la limite de détection précédée du signe « < » est rapportée.

Trois radioéléments sont identifiés au cours de la semaine, il s'agit principalement du ^{99m}Tc (identifié 22 fois sur 24 échantillons), de ^{131}I (10 fois sur 24) et de ^{123}I (6 fois sur 24) .

Tableau III.3 : Variation des teneurs (Bq/L) en radioéléments artificiels γ mesurées dans les eaux usées durant la semaine du 27/05 au 03/06/99 en entrée de la station Mondeville .

DATES	HEURES D – F	DEBITS m ³	ACTIVITE (Bq/L)		
			Tc-99m	I-123	I-131
JEUDI	05 – 07	2471	4,7 ± 0,9	< 0,8	0,77 ± 0,36
	07 – 09	5419	3,0 ± 0,5	0,63 ± 0,27	< 0,5
	09 – 13	10243	69 ± 6	< 0,7	0,72 ± 0,24
	13 – 19	11880	128 ± 13	1,4 ± 0,4	0,83 ± 0,32
	19 – 01	10569	24 ± 3	< 0,8	0,67 ± 0,25
VENDREDI	01 – 05	1874	5,9 ± 1,2	< 1	< 0,7
	05 – 09	6116	3,7 ± 1,7	< 1,1	< 0,5
	09 – 19	15997	96 ± 9	< 0,6	< 0,4
	19 – 01	10569	20 ± 2	< 0,9	< 0,4
SAMEDI	01 – 09	7734	7,2 ± 1,1	< 0,8	0,51 ± 0,2
LUNDI	05 – 07	2801	< 1,2	< 0,8	< 0,7
	07 – 09	4965	< 0,6	0,79 ± 0,27	< 0,4
	09 – 13	10190	41 ± 5	< 1	< 0,6
	13 – 19	12012	182 ± 15	< 0,5	< 0,4
	19 – 01	9400	43 ± 4	< 0,9	< 0,4
MARDI	05 – 09	7049	4,7 ± 0,8	< 0,8	< 0,7
	09 – 19	27550	103 ± 9	< 0,4	0,68 ± 0,23
	19 – 01	10023	34 ± 3	< 0,8	< 0,5
MERCREDI	05 – 09	2706	3,9 ± 0,7	< 0,8	< 0,7
	09 – 13	10280	37 ± 4	< 0,7	1,2 ± 0,3
	13 – 19	12954	226 ± 23	0,88 ± 0,37	0,71 ± 0,31
	19 – 01	9693	30 ± 3	2,4 ± 0,5	0,91 ± 0,27
JEUDI	01 – 05	1778	13 ± 2	< 0,9	< 0,6
	05 – 09	6310	5,2 ± 2,2	1,2 ± 0,6	0,56 ± 0,27
SYNTHESE:					
MIN - MAX			3,0 – 226	0,63 – 2,4	0,51 – 1,2
FREQUENCE			22 / 24	6 / 24	10 / 24

NOTE : Les heures indiquent le début puis la fin (D – F) de collection.

^{99m}Tc est présent dans presque tous les échantillons d'eau usée brute à l'exception de ceux recueillis le lundi matin entre 5 et 9 heures. Les isotopes 123 et 131 de l'iode sont observés moins fréquemment au cours de la semaine. Les concentrations en ¹²³I varient de 0,63 à 2,4 Bq/L, celles de ¹³¹I restent plus stables d'une tranche horaire à l'autre quelque soit la journée considérée (de 0,51 à 1,2 Bq/L). A l'exception du lundi et vendredi, il semble exister une charge rémanente en ¹³¹I dans le réseau.

Le tableau III.4 présente sous forme synoptique la gamme de variation des concentrations en ^{99m}Tc et ¹³¹I obtenues sur les différentes tranches horaires étudiées. Pour ^{99m}Tc, on constate peu de dispersion des valeurs d'une journée à l'autre pour une même tranche horaire. Ainsi de 1h à 9h, les concentrations restent inférieures à 15 Bq/L mais dépassent souvent 100 Bq/L entre 13 et 19h. Ainsi, la valeur maximale (226 ± 23 Bq/L) correspond à l'échantillon collecté le mercredi 5 juin entre 13 et 19 heures.

Pour ^{131}I , et à l'exception du lundi et vendredi, les valeurs restent relativement stables (valeur moyenne de 0,76 Bq/L) d'une tranche horaire à une autre, quelque soit la journée considérée.

La contamination du réseau, variable d'un radioélément à l'autre, peut s'expliquer par la nature des pratiques médicales différentes suivant le produit utilisé. Ainsi, comme nous l'avons vu, $^{99\text{m}}\text{Tc}$ est le radio-isotope le plus souvent utilisé dans les actes de diagnostic. Après injection aux patients, une grande partie de l'activité administrée est évacuée par voie naturelle vers le réseau d'assainissement. Outre la fréquence d'utilisation du radio-isotope et les quantités injectées, le temps d'élimination du produit par l'organisme est un facteur prépondérant à son arrivée dans le réseau collectif. Ce temps d'élimination va dépendre à la fois de la période physique du radio-isotope et de sa disparition de l'organisme par un processus physiologique (période biologique).

	5 h	7 h	9 h	13 h	19 h	1 h	5 h					
Jeudi	4,7	3,0	69	128	24	5,9	0,77	< 0,5	0,72	0,83	0,67	< 0,7
Vendredi	3,7		96	20	7,2	< 0,5		< 0,4	< 0,4	0,51		
Samedi	7,2											
	0,51											
Lundi	< 1,2	< 0,6	41	182	43	< 0,6	< 0,4	< 0,4				
	< 0,7	< 0,4										
mardi	4,7		103	34			103		34			
	< 0,7						0,68		< 0,5			
Mercredi	3,9		37	226	30	13	< 0,7		1,2	0,71	0,91	< 0,6
jeudi	5,2											
	0,56											

[c] : concentration (Bq/L) de ^{99m}Tc

[c] : concentration (Bq/L) de ¹³¹I



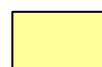
prélèvement non effectué



[c] < 3



15 < [c] < 50 Bq/L



3 < [c] < 15 Bq/L



[c] > 50

Tableau III.4 : Synoptique des gammes de variation des concentrations [c] en ^{99m}Tc et ¹³¹I mesurées durant la semaine du 27/05 au 03/06/99 dans les eaux usées en entrée de la station Mondeville.

- **caractérisation sur une journée**

La caractérisation des eaux usées brutes sur une semaine a permis de mettre en évidence d'importantes variations en concentration au cours d'une seule journée. Afin d'affiner l'analyse, une caractérisation heure par heure sur une seule journée a été réalisée. Au vu des résultats obtenus sur une semaine, la journée du mercredi, jour où le flux de pollution était le plus important, a été retenue. Les résultats (concentration en Bq/L) sont présentés dans le tableau III.5 ; lorsque le radioélément concerné n'a pas été décelé, la limite de détection précédée du signe « < » est rapportée.

Tableau III.5 : Variation des teneurs (Bq/L) en radioéléments artificiels γ mesurées dans les eaux usées au cours de la journée du mercredi 16/06/99 en entrée de la station Mondeville .

DEBITS		ACTIVITE (Bq/L)			
HEURES	(m ³ /h)	Tc-99m	I-123	I-131	In-111
09 – 10	2544	5,5 ± 1,0	< 0,9	< 1,2	< 0,8
10 – 11	2494	7,0 ± 1,2	< 1,0	< 1,7	< 1,0
11 – 12	2464	16 ± 2	< 0,9	< 1,3	< 0,8
12 – 13	2362	152 ± 16	< 1,1	< 1,5	< 0,9
13 – 14	2126	273 ± 24	< 0,9	2,0 ± 0,7	< 0,9
14 – 15	1735	150 ± 16	< 1,0	2,2 ± 0,8	< 1,0
15 – 16	1623	332 ± 29	< 0,8	< 1,0	< 0,8
16 – 17	1856	417 ± 42	< 1,1	< 1,4	1,4 ± 0,6
17 – 18	1991	258 ± 22	12 ± 2	< 1,0	< 0,8
18 – 19	2145	132 ± 14	7,9 ± 1,2	< 1,2	< 1,0
19 – 20	2137	130 ± 15	1,3 ± 0,4	< 0,4	< 0,4
20 – 21	1903	28 ± 3	< 0,6	< 0,6	< 0,5
21 – 22	1697	81 ± 9	< 1,4	< 1,0	< 0,9
22 – 23	1227	24 ± 5	< 2,2	3,0 ± 1,0	< 1,2
23 – 00	776	12 ± 3	< 1,8	< 1,3	< 0,9
00 – 01	492	19 ± 4	< 2,2	< 1,5	< 1,3
01 – 05	395	6,4 ± 2,3	< 2,2	< 1,3	< 1,4
05 – 07	1823	7,7 ± 1,7	< 1,4	< 1,0	< 0,8
07 – 08	2684	7,8 ± 2,2	< 1,6	7,4 ± 1,4	< 1,1
08 – 09	2536	6,9 ± 1,6	< 1,3	< 1,1	< 0,8

SYNTHESE

(MIN – MAX)	5,5 – 417	1,3 – 12	2 – 7,4	1,4
FREQUENCE	20 / 20	3 / 20	4 / 20	1 / 20

ECHANTILLON MOYEN SUR 24 H

ACTIVITE (Bq/L)	17 ± 2	0,7 ± 0,3	0,5 ± 0,2	-
-----------------	--------	-----------	-----------	---

^{99m}Tc est présent dans tous les échantillons et constitue ici encore la principale source de contamination des eaux usées brutes. Ce travail confirme un marquage plus faible durant la nuit mais également durant la matinée jusqu'à la mi-journée, l'augmentation des concentrations ne s'effectuant qu'à partir de la tranche horaire 11-12 h. Ainsi la plus faible concentration est

relevée dans l'échantillon d'eau brute recueillie entre 9 et 10 heures (5,5 Bq/L) ; la plus forte provient du prélèvement effectué entre 16 et 17 heures (417 Bq/L).

^{123}I est identifié dans trois échantillons avec des activités volumiques variant de 1,3 à 12 Bq/L.

^{131}I est décelé dans quatre échantillons avec une activité variant de 2,0 à 7,4 Bq/L.

^{111}In est observé une seule fois avec 1,4 Bq/L. Il est difficile ici de répondre sur le caractère ponctuel ou non des arrivées en ^{131}I et ^{123}I étant donné les limites de détection plus élevées imposées par des temps courts de comptage. Ce choix de raccourcir les temps d'analyse permettait d'identifier les courtes périodes dans chaque échantillon. Ainsi seules les « pointes » en teneurs pour chacun des éléments peuvent être identifiées.

Comme nous l'avons noté lors de la caractérisation sur une semaine, les heures d'arrivées pour ^{123}I , ^{131}I et $^{99\text{m}}\text{Tc}$ sont différentes. Les teneurs maximum en ^{123}I apparaissent en fin de journée (de 17 à 20h), celles de ^{131}I sont plus réparties avec une pointe au petit matin (entre 7 et 8h). Enfin, $^{99\text{m}}\text{Tc}$ arrive principalement entre 12 et 22h à l'entrée de la station et les concentrations mesurées croissent principalement entre 16-17h pour ensuite décroître.

3) Problème de variabilité des résultats lié à la décroissance radioactive

Parallèlement à l'analyse heure par heure des effluents usés bruts du mercredi 16 juin, un échantillon d'eau usée, moyen sur 24h, et asservi au débit a été analysé. Les résultats sont présentés en bas du tableau III.5. Seul, trois radioéléments sont identifiés, ^{99m}Tc (17 Bq/L), ^{123}I (0,7 Bq/L) et ^{131}I (0,5 Bq/L). Les teneurs acquises ici sont plus basses que celles obtenues heure par heure.

Cette « chute » des concentrations avec l'élargissement des durées de collection n'est pas due qu'au phénomène de dilution. Les radioéléments contenus dans un échantillon s'élimine d'eux-mêmes par décroissance radioactive, leur disparition étant d'autant plus prononcée que leur période physique est courte (cas de ^{99m}Tc et ^{123}I principalement). Afin de palier à ce problème, il est nécessaire de connaître les heures d'arrivée de chaque radio-isotope à l'entrée de la station permettant alors par extrapolation d'estimer chacune des pertes.

A titre indicatif il est possible d'évaluer les activités résiduelles restantes (en pourcentage), après 24 heures, pour chacun des radioéléments identifiés dans cette étude (tableau III.6). Dans le cas d'une collection de l'échantillon sur une journée, ces calculs correspondent au cas extrême, à savoir, une arrivée massive du flux radioactif au tout début de la collection.

Tableau III.6 : *Activité résiduelle après 24h (en pourcentage de l'activité initiale) pour quelques radioéléments artificiels gamma.*

Radioélément	période	Activité résiduelle
Tc-99m	6 h	6 %
Tl-201	3j	79 %
I-131	8j	92 %
I-123	12 h	28 %
Ga-67	3,3 j	81 %
In-111	2,8 j	78 %

On constate à la vue de ces chiffres, que la perte peut être négligée dans le cas de ^{131}I , mais doit être prise en considération pour les autres radioéléments identifiés, essentiellement pour ^{99m}Tc et ^{123}I .

4) Evaluation du flux journalier de pollution radioactive

Connaissant les débits, il est possible, à partir des mesures faites, d'évaluer le flux de pollution radioactive auquel est confrontée la station pour les tranches horaires prises en références.

Par exemple pour la journée du mercredi 16 juin 1999, où a été effectuée la caractérisation horaire des effluents bruts, il est possible ainsi d'évaluer le flux total entrant. Les résultats, en millions de Becquerel (MBq), sont donnés dans le tableau III.7. Le profil heure par heure de l'activité totale entrante en ^{99m}Tc est présenté sur la figure III.2.

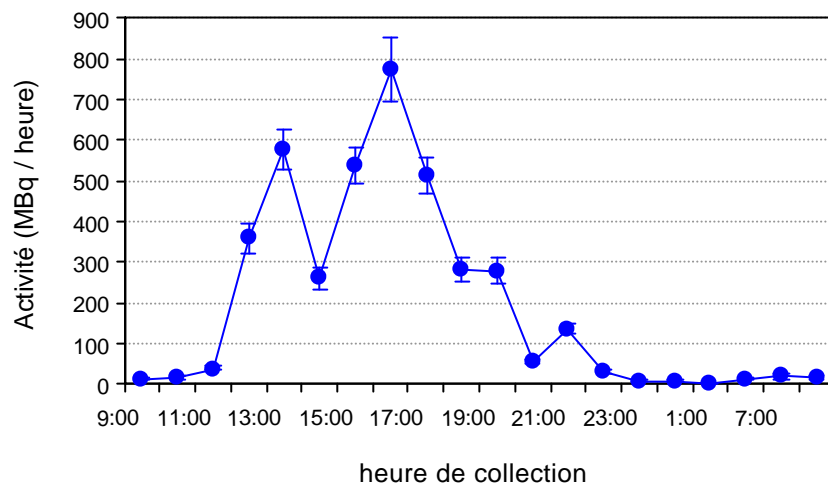
Tableau III.7 : Evaluation du flux total entrant (en MBq/heure) sur la journée du 16/06/99 en entrée de la station Mondeville .

DEBITS		ACTIVITE (MBq/heure)			
HEURES	(m ³ /h)	Tc-99m	I-123	I-131	In-111
09 – 10	2544	14 ± 3	< 2,3	< 3,0	< 2,0
10 – 11	2494	18 ± 3	< 2,5	< 4,3	< 2,5
11 – 12	2464	39 ± 5	< 2,2	< 3,2	< 2,0
12 – 13	2362	359 ± 38	< 2,6	< 3,6	< 2,1
13 – 14	2126	580 ± 51	< 1,9	4,2 ± 1,5	< 1,9
14 – 15	1735	261 ± 28	< 1,7	3,8 ± 1,4	< 1,7
15 – 16	1623	539 ± 47	< 1,3	< 1,6	< 1,3
16 – 17	1856	774 ± 78	< 2,0	< 2,6	2,6 ± 1,2
17 – 18	1991	513 ± 44	24 ± 4	< 2,0	< 1,6
18 – 19	2145	283 ± 30	17 ± 3	< 2,6	< 2,2
19 – 20	2137	278 ± 32	2,7 ± 0,8	< 0,9	< 0,9
20 – 21	1903	53 ± 6	< 1,2	< 1,2	< 1,0
21 – 22	1697	137 ± 15	< 2,4	< 1,7	< 1,6
22 – 23	1227	30 ± 6	< 2,7	3,7 ± 1,2	< 1,5
23 – 00	776	9,3 ± 2,4	< 1,4	< 1,0	< 0,7
00 – 01	492	9,3 ± 2,0	< 1,1	< 0,8	< 0,7
01 – 05	395	2,5 ± 0,9	< 0,9	< 0,5	< 0,6
05 – 07	1823	14 ± 3	< 2,6	< 1,8	< 1,5
07 – 08	2684	21 ± 6	< 4,3	20 ± 4	< 3,0
08 – 09	2536	18 ± 5	< 3,3	< 2,8	< 2,1
CHARGE TOTALE SUR LA JOURNEE :					
ACTIVITE (MBq)		3975	43	31	2,6

On constate que 95 % de la charge totale en ^{99m}Tc pénètre dans la station entre 12h et 22h. Si on applique cette hypothèse, il est possible d'estimer le flux total entrant en ^{99m}Tc lors du suivi bi-mensuel des eaux usées brutes, en s'affranchissant de la perte due à la décroissance radioactive de l'élément pendant la durée de collection (24h). La méthode de calcul est présentée dans l'Annexe I au chapitre E. Cette méthode ne peut s'appliquer aux autres

radioéléments dont les apparitions au cours de la journée sont moins régulières. Pour ^{131}I , on estimera que la perte due à la décroissance radioactive est négligeable du fait de sa période plus longue (8 jours). Pour les autres radioéléments on donnera une fourchette correspondant aux deux hypothèses extrêmes : arrivée ponctuelle du flux de pollution en début de collection (estimation maximale), et en fin de collection (estimation minimale).

Figure III.2 : Variation du flux en MBq/h de ^{99m}Tc , mesuré dans les eaux usées à l'entrée de la station Mondeville le mercredi 16/06/99.



Le bilan des activités totales entrantes est donné dans le tableau III.8. Les quantités de radioéléments pénétrant au cours d'une journée dans la station d'épuration sont relativement importantes. Elles varient de 1135 à 6562 MBq/jour en ce qui concerne ^{99m}Tc et de 15 à 321 MBq/jour pour ^{131}I . Pour les autres radioéléments mesurés plus rarement, le flux journalier peut atteindre une trentaine de million de becquerel pour ^{201}Tl et ^{123}I et jusqu'à 200 MBq pour ^{67}Ga , mesuré une seule fois. ^{111}In n'est décelé qu'une seule fois au cours de la caractérisation horaire du mercredi 16 juin, avec une quantité de 2,6 MBq, apparaissant entre 16 et 17 heures.

Tableau III.8 : Evaluation du flux journalier (MBq/jour) en radioéléments artificiels γ en entrée de la station Mondeville au cours du suivi bi-mensuel de juin à octobre 1999.

JOURS	DATES	Débits en m ³ /j	Activité (MBq / jour)					
			Tc-99m	I-131	Tl-201	I-123	Ga-67	In-111
vendredi	28/05/99	40644	3902	< 16	< 16	< 36	< 20	< 13
lundi	31/05/99	39335	3273	< 23	< 47	< 35	< 35	< 16
mercredi	02/06/99	40380	5427	< 16	< 20	< 32	< 20	< 13
mercredi	09/06/99	42369	4618	28	< 46	< 76	182 - 216	< 18
mercredi	16/06/99	40017	3975	31	< 17	43	< 17	2,6
lundi	28/06/99	39530	6562	47	29 - 37	< 16	< 16	< 12
jeudi	08/07/99	39459	2367	< 8	17 - 21	26 - 46	< 12	< 8
mercredi	21/07/99	34795	2435	38	< 14	< 14	< 14	< 7
lundi	02/08/99	47284	1135	38	< 19	< 19	< 19	< 14
jeudi	19/08/99	32089	3690	48	< 13	< 16	< 16	< 7
jeudi	02/09/99	38650	2976	321	< 16	26 - 45	< 16	< 8
mardi	21/09/99	37521	4089	15	< 15	< 19	< 19	< 12
mercredi	06/10/99	41395	4760	< 12	25 - 32	< 17	< 17	< 9
jeudi	28/10/99	39416	3035	< 16	36 - 45	< 32	< 24	< 16

NOTE :

Pour ²⁰¹Tl, ¹²³I et ⁶⁷Ga :

- sont indiquées les valeurs minimales et maximales attendues.
- pour la journée du 16/06/99, les valeurs ont été calculées à partir des résultats acquis heure par heure.
- les limites de détection sont rapportées à la fin de collection ;

5) Synthèse

Six radioéléments sont identifiés dans les effluents bruts à l'entrée de la station. Il s'agit par ordre décroissant de fréquence d'observation de ^{99m}Tc , puis de ^{131}I , ^{123}I , ^{201}Tl , et enfin ^{67}Ga et ^{111}In . Tous ces radioéléments sont utilisés dans les services de médecine nucléaire à des fins de diagnostic ou thérapeutique. Du fait de leurs périodes relativement courtes (de quelques heures à 8 jours), l'évaluation des teneurs mises en jeu en entrée de la station est rendue difficile compte tenu du phénomène de décroissance radioactive.

Les caractérisations des variations horaires et journalières montrent une charge grossièrement constante en ^{99m}Tc quelque soit le jour ouvré, en sortie du réseau de collecte des eaux usées. Au cours d'une journée, sa concentration augmente à partir de la mi-journée jusqu'au soir et on estime que 95 % de la quantité totale pénètre dans la station entre 12h et 22h. Cette constatation, vérifiée en moyenne sur les mesures effectuées au cours d'une semaine, permet de s'affranchir des problèmes liés à la perte d'information due à la décroissance radioactive de ce radioélément.

En ce qui concerne ^{131}I , fréquemment identifié, son arrivée en entrée de la station semble constante et proches des limites de détection, des « pointes » sont identifiées au cours de la journée. Pour les autres radioéléments, les apparitions sont moins régulières dans le temps.

Cette variation de la contamination en fonction du radio-isotope considéré peut être due en partie aux pratiques médicales, différentes suivant le produit utilisé. Elle dépend également du temps d'élimination du produit injecté à la fois par désintégration (période radioactive) et par processus physiologique (période biologique).

L'estimation de la charge radioactive entrante sur une journée montre que ^{99m}Tc constitue la principale source du flux de pollution radioactive. Les quantités calculées sont importantes, de l'ordre de 3753 MBq par jour en moyenne sur les cinq mois de suivi des eaux usées. Pour ^{131}I , fréquemment identifié (8/14), les quantités estimées par jour sont également élevées (de 15 à 321 MBq). En effet, à titre de comparaison le cumul des activités annuelles rejetées dans les eaux de la Seine par le CNPE⁶ de Nogent-sur-Seine était de 5,6 MBq en iode 131 pour l'année 1999⁷.

⁶ Centre Nucléaire de Production d'Electricité.

⁷ Source : Bulletin mensuel d'information EDF ; CNPE de Nogent-sur-Seine ; Janvier 2000.

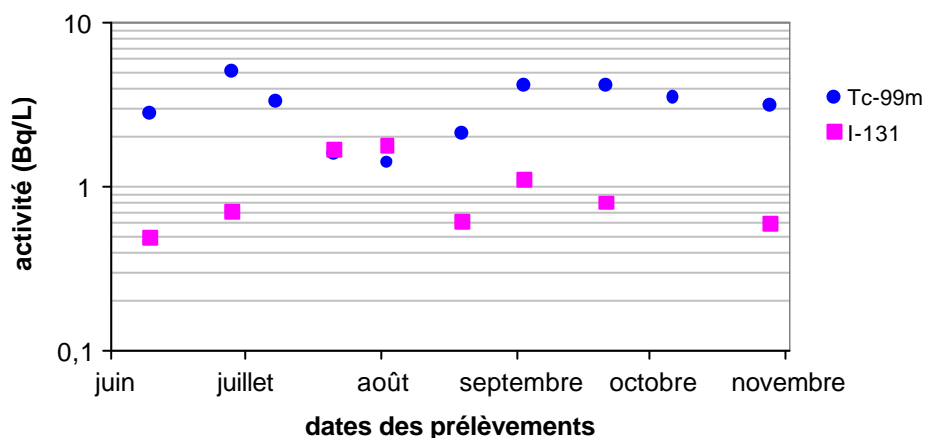
B – Inventaire des radioéléments gamma contenus dans les effluents traités

Parallèlement aux mesures effectuées sur les eaux usées en entrée, un suivi des eaux traitées avant rejet dans le milieu naturel a été effectué dans les mêmes conditions. Les échantillons analysés correspondent à des prélèvements moyens sur 24h en fonction du débit de sortie.

1) Aspect qualitatif et quantitatif

Les résultats obtenus durant les cinq mois du suivi sont présentés dans le tableau III.9. Les variations des teneurs mesurées pour ^{99m}Tc et ^{131}I sont représentées figure III.3.

Figure III.3 : Teneurs (Bq/L) en ^{99m}Tc et ^{131}I mesurées dans les eaux traitées avant rejet dans le milieu naturel au cours du suivi bimensuel (de juin à octobre 1999) en sortie de la station Mondeville



Le suivi des eaux usées traitées met en évidence la présence de trois radioéléments artificiels émetteurs gamma. Il s'agit du ^{99m}Tc , de l' ^{131}I , et de l' ^{111}In , tous identifiés en entrée de la station.

^{99m}Tc est identifié dans tous les échantillons avec une concentration variant essentiellement entre 1 et 4 Bq/L. ^{131}I est identifié dans 8 échantillons sur 10 (0,49 à 1,8 Bq/L). Deux échantillons révèlent la présence ^{111}In avec une activité volumique de 0,38 Bq/L et 1 Bq/L. Ce

radioélément, identifié une seule fois dans un échantillon d'eau usée brute, est détecté, comme nous le verrons par la suite, dans les boues de décantation ainsi que dans les effluents boueux retournant vers le bassin de répartition.

Tableau III.9 : *Gamme de variation (et fréquence d'observation) des teneurs (Bq/L) en radioéléments artificiels γ mesurés dans les eaux traitées avant rejet dans le milieu naturel, lors du suivi bimensuel de juin à octobre.*

Radioélément <i>période</i>	Tc-99m <i>6,0 h</i>	In-111 <i>2,8 j</i>	I-131 <i>8,0 j</i>
Activité (Bq/L) MIN – MAX	1,4 – 5	0,4 – 1	0,5 – 1,8
Fréquence	10 / 10	2 / 10	8 / 10

2) Bilan sortie / entrée

Connaissant le volume des ouvrages (environ 20 000 m³), on estime que le temps de transit des eaux à travers la station d'épuration est en moyenne de 10 heures et dépend de l'importance du débit. En tenant compte de ce temps de latence, il est possible d'estimer la charge radioactive sortante de ^{99m}Tc. Sachant que 95% de la quantité totale de ^{99m}Tc pénètre dans la station entre 12 et 22 heures (hypothèse retenue précédemment), on posera que la charge résiduelle atteint, en moyenne, le bassin de rétention dix heures plus tard, soit entre 22 et 8 heures du matin. Le flux total sortant journalier, calculé à partir des résultats obtenus au cours du suivi bi-mensuel, est présenté dans le tableau suivant (III.10).

Comme pour les eaux usées, ^{99m}Tc constitue l'apport principal en radioactivité des eaux traitées. Durant les cinq mois de suivi bi-mensuel, les quantités rejetées en ^{99m}Tc par 24h varient de 105 à 374 MBq par jour. Pour ¹³¹I, détecté 9 fois sur 11, la charge journalière varie de 17 à 85 MBq/jour.

Tableau III.10 : *Evaluation du flux total sortant journalier (MBq/jour) de la station Mondeville pour ^{99m}Tc et ^{131}I durant la période du suivi bi-mensuel (de juin à octobre 1999).*

JOURS	DATES	Débits en m ³ /j	Activité (MBq / jour)	
			Tc-99m	I-131
mercredi	09/06/99	42369	224	21
mercredi	16/06/99	40017	295	< 16
lundi	28/06/99	39530	374	27
jeudi	08/07/99	39459	246	< 12
mercredi	21/07/99	34795	105	59
lundi	02/08/99	47284	125	85
jeudi	19/08/99	32089	127	20
jeudi	02/09/99	38650	307	43
mardi	21/09/99	37521	298	30
mercredi	06/10/99	41395	274	17
jeudi	28/10/99	39416	231	24

A partir de ces données, il est possible d'établir deux bilans ; un bilan «total» représentant le rapport brut entre les activités sortantes et entrantes et un second bilan, que nous appellerons « actif » ne prenant pas en compte l'élimination de la pollution par décroissance radioactive durant le temps de transit des eaux à l'intérieur de la station. Ce deuxième bilan permet d'estimer l'épuration « active » effectuée durant les étapes de traitement.

Pour ^{99m}Tc , sa disparition liée au phénomène physique s'élève à environ 69 % de la charge entrante ; en effet le temps de séjour des eaux, estimé à 10 heures en moyenne, correspond à 1,7 période physique de ce radioélément. Les deux rapports sortie sur entrée pour ^{99m}Tc sont présentés dans le tableau III.11. Ceux-ci sont relativement constants compte tenu des erreurs sur les mesures. En considérant toutes les sources d'élimination, le bilan total sortie/entrée est de l'ordre de 0,07.

Tableau III.11 : Bilans d'épuration de ^{99m}Tc pour la station Mondeville, estimés durant la période du suivi bi-mensuel de juin à octobre 1999.

JOURS	DATES	Débits en m ³ /j	Teneur en Tc-99m (MBq / jour)		Bilan total	Bilan actif
			entrante	sortante	sortie / entrée	sortie / entrée
mercredi	09/06/99	42369	4618	224	0,05	0,15
mercredi	16/06/99	40017	3975	295	0,07	0,22
lundi	28/06/99	39530	6562	374	0,06	0,18
jeudi	08/07/99	39459	2367	246	0,10	0,33
mercredi	21/07/99	34795	2435	105	0,04	0,14
lundi	02/08/99	47284	1135	125	0,11	0,35
jeudi	19/08/99	32089	3690	127	0,03	0,11
jeudi	02/09/99	38650	2976	307	0,10	0,33
mardi	21/09/99	37521	4089	298	0,07	0,23
mercredi	06/10/99	41395	4760	274	0,06	0,18
jeudi	28/10/99	39416	3035	231	0,08	0,24
MOYENNE		39320	3630	376	0,07	0,22

En ce qui concerne les autres radioéléments, il est difficile d'établir un bilan d'épuration car les valeurs mesurées sont très proches des limites de détection. Toutefois, on constate que par trois fois l'activité de ^{131}I relevée dans les eaux en sortie est supérieure à celle des eaux à l'entrée. De même, ^{111}In est identifié dans deux échantillons d'eau traitée bien que n'étant pas identifié en entrée dans les eaux usées.

3) Synthèse

Les effluents traités avant rejet, contiennent une charge rémanente en radioactivité, essentiellement en ^{99m}Tc et ^{131}I , pouvant contribuer à marquer le milieu aquatique recevant les eaux.

Le bilan d'épuration montre que la station d'épuration joue un rôle notable sur la réduction du flux radioactif contenu dans les eaux usées. Cette épuration « active » de la station est en outre améliorée par l'effet de disparition des radioéléments par décroissance radioactive pendant le temps de transit des eaux à l'intérieur des ouvrages.

C – Répartition des radioéléments gamma à l'intérieur de la station d'épuration

1) Le prétraitement

Les effluents bruts sont d'abord dirigés vers une grille pour les débarrasser des matières solides de dimension donnée. Ensuite dans un premier bassin, les sables et les matières floculantes sont décantés. Le flux restant est ensuite traité en vue d'éliminer les huiles (élimination gravitaire des huiles libres et des matières grasses flottantes).

L'objet est de pouvoir estimer le rôle du prétraitement (dégrillage, dessablage et déshuilage) dans le devenir des radioéléments en mesurant leur quantité dans les matières en suspension éliminée des effluents bruts. Pour ce faire, des prélèvements de « sable » et de « graisse » ont été effectués sur une journée (une aliquote collectée par heure). Les mesures des émetteurs gamma ont porté sur des échantillons moyens, représentatifs des entrées sur la demi-journée de 9h30 à 19h30. Parallèlement, des mesures ont été effectuées, sur les eaux usées brutes et eaux usées traitées (échantillon moyen sur 24h, asservi au débit) dans le cadre du suivi bi-mensuel. Les activités significatives (Bq/kg sec) mesurées dans les résidus sont présentées dans le tableau III.12.

Tableau III.12 : *Teneurs (Bq/kg sec) en radioéléments artificiels γ mesurées dans les résidus de prétraitement éliminés des effluents bruts sur une demi-journée par la station Mondeville.*

Radioélément <i>période</i>	Tc-99m <i>6,0 h</i>	In-111 <i>2,8 j</i>	I-123 <i>13,2 h</i>	I-131 <i>8,0 j</i>	Tl-201 <i>3,0 j</i>
GRAISSE	199 ± 32	7,6 ± 1,6	17 ± 4	7,0 ± 1,9	24 ± 7
SABLE	279 ± 35	20 ± 4	20 ± 3	5,9 ± 1,0	75 ± 10

a) sable

Cinq radioéléments sont identifiés. Il s'agit de ^{99m}Tc , ^{201}Tl , ^{111}In , ^{123}I et ^{131}I . L'activité la plus importante est celle du ^{99m}Tc avec 279 Bq/kg sec, puis du ^{201}Tl avec 75 Bq/kg sec. Les activités mesurées pour ^{111}In et ^{123}I sont de l'ordre de 20 Bq/kg sec. L'activité de ^{131}I est de 6 Bq/kg sec.

b) graisse

Dans les graisses, les cinq mêmes radioéléments sont observés. Les activités mesurées sont en deçà de celles mesurées dans les sables pour ^{99m}Tc (199 Bq/Kg sec), ^{201}Tl (24 Bq/Kg sec) et ^{111}In (7,6 Bq/kg sec). Pour les autres radioéléments, les activités mesurées sont relativement proches de celles déterminées dans les sables : 17 Bq/kg sec pour ^{123}I , et 7 Bq/kg sec pour ^{131}I .

c) observation

Dans les sables, la présence de ces radioéléments peut être due à l'agglomération et par suite à la concentration des masses en suspension supportant les radio-traceurs. En ce qui concerne les « graisses », leur affinité avec les radioéléments va dépendre du complexe organique, vecteur du traceur radioactif. De plus, ceux-ci peuvent se trouver emprisonnés sous forme micellaire par les corps gras.

Notons de plus que les différents radioéléments identifiés dans les résidus de prétraitement sont généralement observés dans les eaux usées brutes et/ou les boues de décantation.

d) bilan

Connaissant le volume moyen de résidu extrait chaque jour, il est possible d'estimer l'activité totale (en milliers de Becquerel) retenue par les sables et les graisses.

Tableau III.13 : Estimation de l'activité totale journalière retenue dans les résidus de prétraitement de la station d'épuration de Mondeville.

Nature	Densité	Quantité extraite		Activité totale en kBq / j				
		Volume	masse	Tc-99m	In-111	I-123	I-131	Tl-201
GRAISSE	0,9	0,4 m ³ /j	0,36 t/j	72	2,7	6,1	2,5	8,6
SABLE	1,1	0,5 m ³ /j	0,55 t/j	153	11	11	3,2	41

Cette estimation basée sur des données moyennes permet uniquement de donner un ordre de grandeur sur la charge radioactive retenue par le prétraitement. On constate ici, que le prétraitement joue un rôle non négligeable dans l'épuration des eaux usées.

2) Le traitement

L'effluent prétraité est envoyé vers le bassin de répartition pour être dirigé vers l'une des trois tranches de traitement biologique. Les étapes de décantation puis de traitement biologique vont donner naissance à des boues (primaires et biologiques) qui seront traitées à l'intérieur de la station. Les boues extraites sont tout d'abord épaissies puis digérées *via* trois digesteurs primaires et deux digesteurs secondaires. Ensuite, après déshydratation par centrifugation, les boues sont incinérées dans un four situé sur le site de la station d'épuration.

Le suivi des boues est réalisé sur des boues épaissies digérées puis déshydratées. La collection de ces boues, appelées « cake », est manuelle et s'effectue sur la durée d'un cycle journalier d'incinération (environ 12h) à raison d'une aliquote par heure. Les mesures sont effectuées sur un échantillon moyen, représentatif de la journée.

Afin de privilégier la mesure des radioéléments à courte période, les mesures sont effectuées sur les échantillons frais. Il est ensuite procédé à une déshydratation des échantillons en étuve (105°C) afin d'en déterminer le pourcentage en matière sèche. La connaissance de cette valeur (de l'ordre de 25% en moyenne), permet de rapporter les activités à la quantité de matière sèche et de s'affranchir ainsi des variations liées aux différences de quantité d'eau entre échantillons. Les deux types d'expression (Bq/kg frais et Bq/kg sec) sont présentés dans les annexes de résultats. Dans cette discussion, seules les mesures exprimées en fonction de la matière sèche des boues (Bq/kg sec) seront abordées.

A deux reprises des mesures ont été effectuées sur des boues épaissies mais non digérées, ceci afin de pouvoir estimer la perte due à la décroissance radioactive lors de la période de digestion.

a) les boues épaissies et digérées

Une synthèse des résultats significatifs en ce qui concerne les émetteurs gamma artificiels est présentée dans le tableau III.14.

Les dix mesures effectuées ont mis en évidence quatre radioéléments artificiels. Il s'agit principalement de l' ^{131}I , puis du ^{201}Tl , du ^{67}Ga et de l' ^{111}In .

L' ^{131}I et le ^{201}Tl sont identifiés dans tous les échantillons analysés. Les plus fortes activités sont relevées pour ^{131}I (86 à 435 Bq/kg sec), celles du ^{201}Tl varient entre 37 et 140 Bq/kg sec.

^{67}Ga est détecté moins fréquemment (5 sur 10 échantillons), les concentrations sont comprises entre 15 et 38 Bq/kg sec. ^{111}In est quant à lui observé à quatre reprises et les activités massiques mesurées varient entre 3,5 et 21 Bq/kg sec.

Tableau III.14 : Gamme de variation (et fréquence d'observation) des teneurs (Bq/kg sec) en radioéléments artificiels γ mesurés dans les boues épaissies puis digérées de la station Mondeville lors du suivi bi-mensuel de juin à octobre 1999.

Radioélément	Ga-67	Tc-99m	In-111	I-123	I-131	Tl-201
période	3,26 j	6,0 h	2,8 j	13,2 h	8,0 j	3,0 j
MIN – MAX	15 - 38	-	3,5 - 21	-	86 - 435	37 - 140
Fréquence	5 / 10	0 / 10	4 / 10	0 / 10	10 / 10	10 / 10

Avant toute interprétation des résultats il est essentiel, au préalable, de tenir compte de la décroissance radioactive des éléments présents du fait de leurs périodes respectives. En effet, comme nous l'avons constaté en étudiant les eaux usées et traitées, la plupart des radioéléments utilisés dans le cadre médical, et identifiés ici, possèdent de courtes périodes. Or, le temps de digestion des boues pouvant durer jusqu'à 30 jours, va participer à l'élimination d'une part importante des radioéléments présents initialement.

Dans cette optique a été réalisé le prélèvement de deux échantillons de boues épaissies et non digérées, donc plus « récentes ».

b) les boues épaissies et non digérées

Les deux mesures soulignent la présence de cinq radioéléments : $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{201}Tl , ^{131}I , ^{67}Ga et ^{111}In .

Tableau III.15 : Gamme de variation (et fréquence d'observation) des teneurs (Bq/kg sec) en radioéléments artificiels γ mesurés dans les boues épaissies non digérées de la station Mondeville lors de deux prélèvements ponctuels.

Radioélément	Ga-67	Tc-99m	In-111	I-123	I-131	Tl-201
période	3,26 j	6,0 h	2,8 j	13,2 h	8,0 j	3,0 j
MIN - MAX	16 – 93	3141 - 9735	163	-	278 - 335	401 - 515
Fréquence	2 / 2	2 / 2	1 / 2	0 / 2	2 / 2	2 / 2

On constate que $^{99\text{m}}\text{Tc}$ est présent, dans les deux échantillons analysés, en grande quantité alors qu'on ne peut le déceler au terme de la digestion. Sa disparition dans les boues épaissies et digérées est liée à sa décroissance radioactive (période de 6 heures). A titre d'illustration, les

activités résiduelles en fonction du temps écoulé (lié à la digestion) s'établissent comme indiqué dans le tableau ci-dessous. On note ainsi qu'au bout de trois jours le ^{99m}Tc n'est déjà plus détectable et qu'au terme des 30 jours, il n'en reste plus.

Tableau III.16 : *Activités massiques résiduelles en ^{99m}Tc en fonction de l' « âge » de l'échantillon.*

Temps de digestion	activités massiques résiduelles (Bq/kg sec)
0 jour	9735
1 jour	611
2 jours	38
3 jours	2,4
30 jours	$8 \cdot 10^{-33}$

Pour les autres radioéléments, la décroissance radioactive, plus modeste pour certain, sera également à l'origine d'une réduction importante des activités contenues initialement dans les boues, comme le présente le tableau suivant :

Tableau III.17 : *Activités massiques résiduelles (en pourcentage de la quantité initiale) de radioéléments émetteurs γ en fonction de l' « âge » de l'échantillon.*

âge	Activités massiques résiduelles (%)					
	Tc-99m 6,0 h	I-123 13,2 h	In-111 2,8 j	Tl-201 3,0 j	Ga-67 3,26 j	I-131 8,0 j
1 jour	6 %	28 %	78 %	79 %	81 %	92 %
4 jours	0 %	0,7 %	37 %	40 %	43 %	71 %
8 jours	0 %	0 %	14 %	16 %	18 %	50 %
15 jours	0 %	0 %	2,4 %	3 %	4 %	27 %
1 mois	0 %	0 %	0,06 %	0,10 %	0,2 %	7 %
2 mois	0 %	0 %	0 %	0 %	0 %	0,6 %

c) observations

L'ensemble des mesures effectuées sur les boues montre la présence, en quantité importante, de radioéléments identifiés dans les eaux usées. Ce transfert peut s'expliquer par un phénomène de distribution (en terme d'adsorption sur les particules) en faveur des boues. Cependant il convient de relativiser cette hypothèse puisque la physico-chimie de l'élément est un facteur prépondérant et seuls des essais en laboratoire pourraient permettre d'évaluer le coefficient de distribution (k_d) pour chacun des éléments détectés.

Il est aussi réaliste de penser que les fortes activités mesurées ici proviennent d'une part de l'agglomération des particules en suspension ayant préalablement fixé certains radioéléments, et d'autre part d'un effet de floculation d'éléments colloïdaux, formes sous lesquelles peuvent exister les radio-isotopes. Ces agrégats porteurs de radioéléments vont ensuite constituer les boues par décantation.

Des études⁸ expliquent de même la forte présence de divers contaminants (micro-polluants organiques, micro-organismes, éléments traces) dans les boues d'épuration [CSHPF - 1998].

d) bilan

Il est possible, à partir des résultats acquis, d'établir un bilan des quantités de radioéléments contenus dans les boues avant leur incinération. Celles-ci sont exprimées en milliers de becquerel par jour (kBq/jour).

Tableau III.18 : Bilan des activités totales de ⁶⁷Ga, ¹¹¹In, ¹³¹I et ²⁰¹Tl contenues dans les boues avant incinération.

Dates	Quantité traitée ^(*) cake sec (t / j)	Activité totale en kBq / j			
		Ga-67	In-111	I-131	Tl-201
07/06/99	11,0 t / j	-	50	941	409
29/06/99	11,0 t / j	415	-	1203	871
07/07/99	9,0 t / j	186	-	900	933
22/07/99	9,0 t / j	135	-	392	687
03/08/99	7,9 t / j	190	-	3403	769
18/08/99	7,9 t / j	-	-	2074	457
06/09/99	7,8 t / j	-	27	1305	698
23/09/99	7,8 t / j	-	24	2143	595
08/10/99	8,5 t / j	268	174	728	1191

Note : (*) données moyennes calculées sur le mois⁹

⁸ Synthèse du groupe de travail sur les aspects sanitaires liés à l'utilisation en agriculture des boues résiduelles .

⁹ Source : Bilan d'exploitation mensuel - OTV - Station d'épuration des eaux usées du District du Grand Caen.

3) Incinération des boues

Le traitement des boues se termine par leur incinération sur site. Dans le four, leur combustion est initiée par la présence de méthane, le gaz provenant de la digestion des boues. L'incinération s'effectue sur un lit de sable fluidifié. Un procédé de lavage des fumées conduit à la production d'effluents chargés en cendres en sortie du four. En sortie, l'eau chargée en cendre est dirigée vers une lagune d'égouttage ; elle sera ensuite renvoyée vers la tête de la station, au niveau du premier répartiteur.

Les mesures ont été effectuées sur une journée de 9h30 à 15h30, d'une part sur les eaux de lavage des fumées avant et après leur injection dans le four, et d'autre part sur les cendres. Parallèlement, un échantillon moyen de boues déshydratées alimentant le four durant cette même période, a été collecté et analysé. Suite à l'arrêt du four ce même jour, nous avons pu prélever, une fois refroidi, un échantillon du sable servant de lit d'incinération.

a) eaux de lavage des fumées

Ce sont les eaux usées traitées du bassin de rétention qui sont utilisées pour le lavage des fumées. Ces eaux sont injectées vers le four à raison de 80 m³/h. Le débit de sortie du four des eaux chargées en cendres est de 75 m³/h. Les résultats des mesures (en Bq/L) sont présentés dans le tableau suivant (tableau III.19).

Tableau III.19 : Teneurs (Bq/L) en radioéléments artificiels γ mesurées dans les eaux de lavage des fumées avant puis après leur passage dans le four.

Radioélément période		Tc-99m 6,0 h	I-131 8,0 j
Eaux de lavage	avant	7,7 ± 4,2	1,5 ± 0,3
	après	7,2 ± 3	2,5 ± 0,4

Deux radioéléments sont détectés dans les deux échantillons d'eau, il s'agit de ^{99m}Tc et ¹³¹I. Les concentrations « avant » et « après » sont très proches pour ^{99m}Tc ; on note par contre un faible gain en ce qui concerne ¹³¹I (gain de 1 Bq/L d'activité) dans les eaux sortant du four.

b) résidus d'incinération (cendres)

Les cendres sont prélevées manuellement (une aliquote par heure) à partir de la récupération des eaux cendrées en sortie du four. Parallèlement un échantillon représentatif de l'ensemble des boues (cakes) alimentant le four a été mesuré. Le résultat des mesures est présenté dans le tableau III.20. On y trouvera également les activités relevées dans le sable servant de lit d'incinération.

Tableau III.20 : Teneurs (Bq/kg sec) en radioéléments artificiels γ mesurées sur les « cakes », les cendres et le sable du lit d'incinération au cours d'un cycle de fonctionnement du four.

Radioélément période	Ga-67 3,26 j	In-111 2,8 j	I-131 8,0 j	Tl-201 3,0 j
CAKES	13 ± 4	4,7 ± 1,2	86 ± 16	47 ± 8
CENDRES	40 ± 5	9,4 ± 1,2	10 ± 2	82 ± 11
SABLE	< 6,5	7,4 ± 2,9	< 0,8	16 ± 5

Les quatre mêmes radioéléments sont observés dans les cakes et cendres, ce sont ^{67}Ga , ^{111}In , ^{131}I et ^{201}Tl , généralement observés lors du suivi bi-mensuel des boues épaissies et digérées. Compte tenu que la crémation des boues entraîne une réduction d'environ moitié du poids initial¹⁰ (il ne reste alors que la fraction minérale), on remarque que les activités relevées avant et après incinération sont relativement identiques en ce qui concerne ^{67}Ga , ^{111}In , ^{201}Tl . Cela semble indiquer, que ces trois radioéléments sont liés à la fraction minérale des boues. Par contre ^{131}I , a pratiquement disparu et il ne reste dans les cendres qu'un vingtième de la quantité initialement présente dans les cakes. Ainsi, contrairement aux trois autres radioéléments, l'iode semble suivre la voie de la matière organique soumise à combustion.

c) lit d'incinération

L'arrêt du four a permis de prélever un échantillon de sable servant de lit d'incinération. Les mesures présentées ici ne sont pas rapportées à la fin de collection mais dans ce cas précis à la date d'arrêt du four. La mesure montre la présence de deux radioéléments : ^{111}In ($7,4 \pm 2,9$ Bq/kg sec) et ^{201}Tl (16 ± 5 Bq/kg sec) présents également dans les boues et cendres.

¹⁰ En moyenne 10 tonnes de cake sec produisent après incinération près de 4 à 5 tonnes de cendres.

d) bilan de la filière d'incinération

A partir des données moyennes fournies par l'exploitant de la station d'épuration, il est possible de dresser un bilan des activités entrantes et sortantes lors du cycle d'incinération sur lequel a reposé nos mesures. Nous rappellerons que nos mesures ont porté sur 6 heures de fonctionnement du four soit un demi-cycle journalier, se terminant par un arrêt total de celui-ci.

Ce bilan, ne peut être généralisé puisque basé sur une étude ponctuelle. Par souci de clarté les erreurs associées à la mesure ne sont pas incluses ici ; cependant il est nécessaire de se rappeler que par exemple, l'activité en ^{131}I est mesurée sur les eaux avec une erreur estimée à 20 %. Un tel bilan permet cependant de donner une idée de la contribution de chaque compartiment (eaux, boues ...) à l'ensemble des activités mises en jeu dans la filière ultime des boues. On remarquera, que les radioéléments ^{111}In et ^{201}Tl (dont le bilan est ici déficitaire) ont été identifiés dans le sable servant de lit d'incinération.

Tableau III.21 : Bilan de la filière d'incinération de la station de Mondeville sur six heures de fonctionnement.

NATURE	CHARGE MOYENNE (*)	CHARGE TOTALE (SUR 6H)	ACTIVITE TOTALE en kBq (sur 6 h)				
			Ga-67	Tc-99m	In-111	I-131	Tl-201
Eaux injectées	80 m ³ / h	480 m ³	-	3696	-	720	-
« Cake sec »	10 t / jour	5 t	65	-	24	430	235
BILAN ENTREE DU FOUR :			65	3696	24	1150	235
Eaux de lavage	75 m ³ / h	450 m ³	-	3240	-	1125	-
Cendres	4 t / jour	2 t	80	-	19	20	164
BILAN SORTIE DU FOUR :			80	3240	19	1145	164

NOTE : (*) pour les compartiments solides, les données sont estimées à partir de moyennes annuelles.

Concernant l'iode 131, il semble comme nous l'avons vu en étudiant chaque compartiment, que sa disparition des boues réduites en cendres se fait au profit d'un enrichissement des eaux de lavage.

L'élément iode est un corps particulièrement volatil. Les boues portées à de hautes températures vont libérer une grande partie de cet élément sous forme gazeuse. Il est donc possible qu'une fraction de l'iode volatil soit captée dans l'eau de lavage des fumées, d'où le gain apparent d'iode 131 dans les eaux sortant du four. Ce phénomène de captation a été étudié

dans le cas de « lavage » par la pluie de l'iode à l'état de vapeur [CAPUT et al.,1993]. L'absorption par l'eau de pluie s'expliquerait par une transformation très rapide de l'iode élémentaire en iodures non volatils ; le caractère d'irréversibilité du phénomène dépendant alors de la composition de l'eau et en particulier de son contenu en substances réductrices. Concernant cette étude, il semble difficile ici d'évaluer la fraction d' ^{131}I qui, non captée par les eaux de lavage, peut s'échapper sous forme de rejet atmosphérique avec la vapeur d'eau.

4) Les « retours en tête »

L'idée est de pouvoir évaluer les apports en éléments radioactifs, au niveau du bassin de répartition, occasionnés par les différents « retours en tête » d'effluents : eaux transformées, boues de surverse. Ainsi le premier répartiteur (lieu choisi pour les prélèvements) reçoit outre les eaux usées prétraitées, les retours des eaux de lavage des fumées, la surverse de l'épaississeur et les centrats (excédant d'eau) obtenus lors de la déshydratation des boues par centrifugation. Nous avons donc collecté durant une demi-journée (de 9h30 à 19h30) les effluents boueux retournant vers le répartiteur, à raison d'un échantillon toutes les heures. La somme des échantillons mise au repos 48h, il a été possible de dissocier la fraction aqueuse de la fraction boueuse (boues et graisses), d'une densité plus faible. Le résultat des mesures effectuées sur les deux fractions est présenté dans le tableau III.22.

Tableau III.22 : *Teneurs (Bq/kg sec et Bq/L) des radioéléments artificiels γ mesurées sur les « retours » vers le bassin de répartition de la station Mondeville.*

Radioélément <i>période</i>	In-111 <i>2,8 j</i>	I-131 <i>8,0 j</i>	Tl-201 <i>3,0 j</i>
FRACTION BOUE en Bq/kg sec	74 ± 16	108 ± 18	500 ± 105
FRACTION EAU en Bq/L	< 0,4	0,6 ± 0,3	< 0,8

a) fraction eau

Un seul radioélément est mesuré, il s'agit de ^{131}I avec une activité de 0,6 Bq/L. Son origine peut être diverse au vu des différents apports constituant les effluents de « retour ». Cet apport en iode peut provenir des centrats (eaux associées aux boues et séparées lors de l'étape de centrifugation) ou bien des eaux de lavage des fumées. A ce sujet, le travail réalisé sur la filière

d'incinération apporte quelques éléments de réponse. En effet, les mesures effectuées sur les eaux sortant du four ont montré une présence en ^{131}I ; son origine serait double : présence initiale dans l'eau servant au lavage (eaux traitées) et/ou apport lors du lavage des fumées (solubilisation de l'iode gazeux).

b) fraction boue

Dans les boues, trois radioéléments sont identifiés, il s'agit de ^{201}Tl , ^{131}I et ^{111}In . L'activité la plus importante est celle de ^{201}Tl avec 500 Bq/kg sec. Les activités de ^{131}I et de ^{111}In sont respectivement de 108 et 74 Bq/kg sec. La présence et la concentration de ces trois radioéléments sont comparables aux mesures effectuées dans les boues épaissies. La nécessité de laisser reposer l'échantillon pour séparer boue et eau ne permet pas de doser le $^{99\text{m}}\text{Tc}$, celui-ci ayant disparu par décroissance.

5) Synthèse

Le bilan d'épuration des éléments radioactifs par la station montre que les étapes de traitement des eaux jouent un rôle vis à vis de ces polluants. Les mesures effectuées sur les différents compartiments de la filière de traitement permettent alors de suivre le devenir de ces polluants à l'intérieur de la station.

Les mesures réalisées sur les boues montrent la présence de six radioéléments, identifiés chacun dans les effluents bruts à l'entrée de la station. Les concentrations relevées sont bien supérieures à celles mesurées dans les eaux. La présence d'éléments radioactifs peut s'expliquer par un phénomène d'agglomération des particules en suspension, ou de coagulation d'éléments colloïdaux, supportant une partie des éléments radioactifs et rejoignant la fraction boue par décantation.

Le devenir des radioéléments contenus dans les boues va dépendre de leur période radioactive propre. En effet, le traitement des boues s'étendant sur une longue durée (jusqu'à 30 jours environ) permet, sinon la disparition, du moins une diminution de la quantité initiale des radioéléments. Ainsi, on remarque que le ^{99m}Tc (de période 6 heures) présent dans les boues « fraîches » a totalement disparu des boues digérées.

Quoiqu'il en soit, les bilans retraçant par journée, la quantité radioactive transportée par les boues digérées en sortie de centrifugation, montrent que cette charge est importante (jusqu'à 3400 kBq d'iode 131 par jour). Il était donc indispensable, de s'intéresser au devenir de ces radioéléments *via* la transformation ultime des boues : l'incinération.

Les mesures effectuées sur les cendres montrent un effet conservatif en ce qui concerne la majorité des éléments radioactifs présents. Par contre, en ce qui concerne ^{131}I , présent en grande quantité dans les boues, on constate une perte lors de la crémation. Cette perte est imputable au caractère extrêmement volatil de l'iode. Il est alors difficile d'estimer la quantité d'iode qui va s'échapper sous forme gazeuse, de la quantité réabsorbée par le flux d'eau injecté dans le four afin de « laver » les fumées.

Enfin, les mesures effectuées sur les « retours en tête » soulignent en quoi, l'étude du devenir des radioéléments à l'intérieur de la station est complexe. Pour ce faire, nous devons tenir compte de la multiplicité des apports possibles en pollution radioactive à chaque étape des filières de traitement via les interconnexions. Ces différents apports, peuvent alors permettre de comprendre la possibilité d'un enrichissement en éléments radioactifs entre l'entrée et la sortie de la station d'épuration.

D – Inventaire des radioéléments gamma présents dans le milieu aquatique recevant les eaux traitées

Le suivi mensuel du milieu aquatique en amont et en aval de l'émissaire de rejet de la station d'épuration permet d'estimer, sur la durée de cette étude, le marquage de l'environnement hors station d'épuration par des radioéléments libérés avec les eaux traitées.

Pour ce suivi mensuel, deux lieux de prélèvement ont été fixés. Le premier en amont de Caen permet d'estimer les apports éventuels de provenance autre que la station d'épuration étudiée. Le deuxième est situé à quelque cent mètres en aval de l'émissaire de rejet de la station.

A ce suivi s'est ajouté un prélèvement de «référence» dans le canal de navigation en aval de la station afin d'évaluer la charge rémanente en radioactivité. Ce «point zéro» était nécessaire dans le cas où des rejets auraient été pratiqués exceptionnellement par la station d'épuration.

Les indicateurs ont été choisis pour leur propriété à fixer puis concentrer les radioéléments et en fonction de leur présence sur le site.

1) L'Orne en amont et en aval de l'émissaire de rejet de la station d'épuration :

Les végétaux aquatiques prélevés en amont de Caen constituent de bons bioindicateurs reconnus en outre pour leur capacité à fixer les iodes. Aucun radioélément radioactif artificiel n'a été identifié dans les végétaux aquatiques pour les cinq échantillons analysés.

En aval de Caen, l'absence totale de végétaux aquatiques a fait porter notre choix sur les sédiments fins de rivière. La propriété des sédiments à fixer des éléments à l'état de trace, dépend de leur composition minéralogique et de la proportion en particules fines. Afin de comparer nos résultats, il est important de caractériser chaque prélèvement.

a) caractéristiques des sédiments

- **Teneur en potassium**

L'activité en ^{40}K dans les sédiments est relativement constante, de 379 à 439 Bq/kg sec.

- **Granulométrie**

Dans l'ensemble les sédiments sont constitués essentiellement de particules fines, inférieures à 50 µm (plus de 75 % de particules fines). Seul le dernier prélèvement semble un peu plus grossier (60 % de particules < 50 µm).

- **Carbone organique total (COT)**

L'intérêt du carbone organique total est de rendre compte, sous certaines conditions, de la teneur en matière organique qui va avoir des effets sur la fixation des radionucléides sur les sédiments (Ancellin et Al, 1979). A titre d'exemple, la fixation du ^{137}Cs est pratiquement nulle en présence de matière organique totale.

Sur l'ensemble, les teneurs en carbone organique total varient peu d'un échantillon à l'autre, de 2,75 à 2,97 % de la masse totale.

b) mesure des émetteurs gamma artificiels

Le tableau III.23 présente une synthèse des activités des radioéléments artificiels émetteurs gamma mesurés dans les sédiments. Quatre radioéléments artificiels sont identifiés, il s'agit du césium 137 (^{137}Cs), du cobalt 60 (^{60}Co), de l'américium 241 (^{241}Am) et de l'iode 131 (^{131}I).

Tableau III.23 : Gamme de variation (et fréquence d'observation) des teneurs (Bq/kg sec) en radioéléments artificiels γ mesurés sur les sédiments de cours d'eau prélevés sur l'Orne en aval de l'émissaire de rejet lors du suivi mensuel.

	I-131	Co-60	Cs-137	Am-241
MIN – MAX	6,2 - 15	3,7 – 7,6	6,3 – 11	1,1 – 2,4
Fréquence	4 / 5	5 / 5	5 / 5	5 / 5

- ^{60}Co , ^{241}Am et ^{137}Cs

^{60}Co et ^{241}Am sont identifiés dans tous les échantillons avec une activité variant de 3,7 à 7,6 Bq/kg sec pour le premier et de 1,1 à 2,4 Bq/kg sec pour le second. L'origine des deux radioéléments ^{241}Am et ^{60}Co est vraisemblablement marine et proviendrait des rejets d'effluents liquides en mer de l'industrie nucléaire côtière. De plus il ne semble pas exister sur le district de Caen de structures (hospitalière ou de recherche) susceptibles d'utiliser ces radioéléments de longues périodes en source « non scellée ». Soulignons enfin que ces deux radioéléments n'ont pas été identifiés à l'intérieur de la station d'épuration. Le point de prélèvement étudié, en aval

de Caen est soumis à l'influence des eaux douces de l'Orne mais également des eaux marines, principalement en période d'étiage puisque le barrage de Caen est fermé. Une étude¹¹ a montré que les sédiments marins peuvent remonter dans l'estuaire où il subissent une dilution, d'origine tellurique, par les suspensions apportées par la rivière, surtout en période de crue [J.P. AUFFRET, P. GUEGUENIAT et al ; 1985].

Le ¹³⁷Cs est décelé dans tous les échantillons analysés avec une activité variant de 6,3 à 11 Bq/kg sec. Ce radioélément provient essentiellement des retombées anciennes (essais nucléaires aériens et accident de Tchernobyl) auquel peut s'ajouter une très faible partie issue des effluents liquides des installations nucléaires côtières.

- ¹³¹I :

¹³¹I est identifié dans quatre échantillons sur cinq avec des activités variant de 6,2 à 15 Bq/kg sec. Contrairement aux trois autres radioéléments artificiels identifiés, celui-ci a certainement pour origine les rejets provenant de la station d'épuration. En effet, comme nous l'avons vu, cet élément est décelé dans les effluents bruts à l'entrée de la station et dans une moindre mesure dans les effluents traités. En outre, compte tenu de la courte période physique de ce radioélément (8 jours), il ne peut y avoir accumulation. Les sédiments traduisent donc un ou plusieurs événements récents. Enfin, aucun marquage n'a été mis en évidence en amont de Caen, il ne peut y avoir de contribution autre que la station d'épuration étudiée ici.

Ces quatre radioéléments artificiels ont déjà été mis en évidence, à des concentrations semblables, dans une précédente étude menée par ACRO et AESN¹² dans des sédiments recueillis dans l'Orne en aval de Caen [G. PIGREE ; 1998].

Les résultats de ces mesures, effectuées au printemps 1997 et hiver 1998 en amont et en aval de la station d'épuration du District du grand Caen, sont présentés dans le tableau suivant (III.24).

Tableau III.24 : Teneurs (Bq/kg sec) en radioéléments artificiels γ mesurées dans les sédiments de l'Orne en amont et en aval de la station d'épuration lors de « l'étude de la qualité radiologique des eaux marines et continentales du littoral Normand » réalisée par AESN/ACRO .

	Dates de prélèvement	I-131	Co-60	Cs-137	Am-241
ORNE en amont (AMAYE sur ORNE)	09/07/97	NR	-	23 ± 4	-
	25/02/98	-	-	6,6 ± 1,0	-
ORNE en aval de la station d'épuration	09/07/97	7,9 ± 1,7	7,0 ± 0,9	8,6 ± 1,0	2,1 ± 1,5
	25/02/98	5,3 ± 0,8	5,3 ± 0,7	8,3 ± 0,9	1,4 ± 0,5

¹¹ Etude réalisée de 1977 à 1983 par J.P. Auffret, P. Guéguénat *et al.*

¹² *Etude de la qualité radiologique des eaux marines et continentales du littoral Normand* ; AESN/ACRO - synthèse des travaux 1997 et 1998.

Seul ^{137}Cs est identifié dans les sédiments prélevés en amont de Caen sa provenance étant due, comme nous l'avons vu précédemment aux retombées anciennes des essais nucléaires aériens et de l'accident de Tchernobyl.

2) Canal de navigation

- les algues aquatiques

Dans les prélèvements d'algues aquatiques, tenant lieu de référence, aucun radioélément artificiel n'a été décelé. Aucun rejet dans le canal n'a été signalé par l'exploitant de la station durant le cours de cette étude.

En 1998 des mesures¹³ ont été effectuées au mois d'août et septembre portant sur les mêmes bioindicateurs et prélevées sur le même lieu. Les résultats varient de 45 à 2629 Bq/kg sec en Iode 131 suivant le jour de prélèvement (3 prélèvements au total, voir tableau III.20). Après vérification il s'est avéré que cette année là (1998) des rejets ont été effectués durant l'été dans le canal de navigation par la station d'épuration.

Tableau III.25 : Teneurs en ^{131}I (Bq/kg sec) mesurées dans les végétaux aquatiques prélevés dans le canal de navigation à 1 km en aval de la station d'épuration en été 1998 dans le cadre d'une étude interne ACRO.

Dates de prélèvement	20/08/98	04/09/98	09/09/98
Activité (Bq/kg sec)	45 ± 9	2334 ± 268	2629 ± 310

Ces trois analyses mettent bien en évidence un marquage en ^{131}I , lié à un (ou plusieurs) rejet récent d'eaux traitées en provenance de la station d'épuration. Cette mise en évidence est facilitée par la propriété de concentration des végétaux aquatiques en faveur de l'élément iode.

Les mesures de l'été 1998, ainsi que le suivi mensuel de l'Orne durant cette étude, en aval de l'émissaire de rejet de la station d'épuration, montrent la présence d'un radioélément, ^{131}I , dans le milieu aquatique recevant les eaux traitées de la station d'épuration. Il semble bien que sa présence soit uniquement due aux rejets de la station puisque sa présence n'est visible en amont de la station d'épuration, ni dans les mousses aquatiques au cours de cette étude, ni dans les

¹³ Etude interne A.C.R.O.

sédiments prélevés lors d'une étude antérieure¹⁴. Il se trouve également, comme nous l'avons vu que ¹³¹I est mesuré fréquemment (8 fois sur 10 mesures) dans les eaux usées traitées avant rejet, et que ce radioélément possède la période physique la plus longue (8 jours) comparée aux autres radioéléments identifiés à l'intérieur de la station.

¹⁴ *Etude de la qualité radiologique des eaux marines et continentales du littoral Normand ; AESN/ACRO - synthèse des travaux 1997 et 1998.*

IV. Discussion et conclusion

L'objectif de ce travail était d'acquérir des connaissances sur l'identité, l'activité et le devenir des radioéléments qui transitent par une station d'épuration et leur contribution au marquage radioactif du milieu aquatique qui reçoit les eaux traitées.

Le choix de la station d'épuration du District du Grand Caen, dénommée « Mondeville », répond aux objectifs de cette étude puisque des installations (hôpitaux, cliniques, centres de recherche) disposant d'une autorisation de rejet d'effluents liquides radioactifs sont raccordées au réseau d'assainissement.

Dans les effluents bruts à l'entrée de la station, six radioéléments artificiels sont identifiés ; il s'agit de ^{99m}Tc , ^{131}I , ^{123}I , ^{111}In , ^{201}Tl et ^{67}Ga . Parmi ceux-ci ^{99m}Tc est, à une exception près, systématiquement détecté. L'ensemble de ces radioéléments émetteurs gamma, de courtes périodes physiques, sont utilisés en médecine nucléaire à des fins d'actes de diagnostics ou thérapeutiques.

Le flux total entrant estimé pour une journée est relativement important - de l'ordre de 4000 MBq (soit 4 milliard de Becquerel) pour ^{99m}Tc - l'essentiel pénétrant entre 12 et 22 heures. ^{131}I est également fréquemment identifié, le flux total journalier pouvant varier de 15 à 300 MBq.

En sortie de la station, dans les eaux épurées avant rejet, seuls trois radioéléments (^{99m}Tc , ^{131}I , ^{111}In) sont identifiés. Il est difficile d'établir un bilan d'épuration concernant le flux de pollution radioactive. En effet, les nombreux retours en tête peuvent biaiser le simple rapport entrée/sortie. En ce qui concerne ^{99m}Tc , dont l'activité est la plus importante dans les effluents, le rapport du flux entrée/sortie est relativement constant compte tenu du pourcentage d'erreur associé à la mesure. Ce bilan non équilibré permet de supposer que les filières de traitement des eaux vont jouer un rôle d'épuration vis-à-vis de ces polluants.

A l'intérieur de la station, l'effluent est épuré dès le prétraitement. L'analyse des résidus (sables et graisses) révèle la présence de cinq radioéléments : ^{99m}Tc , ^{111}In , ^{123}I , ^{131}I et ^{201}Tl . On peut supposer que la présence de ces éléments dans les matières flottantes isolées est due à un effet d'agglomération puis de concentration de particules plus fines porteuses des radio-toxiques. Par ailleurs, il faut rappeler que certains radioéléments peuvent être fixés (pour les besoins

d'examens diagnostiques) sur des « vecteurs » organiques ; dans ces conditions, la formation de structures micellaires avec les graisses incluant des radioéléments organifiés est plausible. Enfin, une partie de l'activité mesurée peut provenir des selles de patients traités en médecine nucléaire contenant une partie de l'activité administrée¹⁵.

Les traitements suivants (décantation et traitement biologique) vont accentuer l'élimination des radioéléments contenus dans l'effluent brut. Les mesures effectuées sur les boues de décantation montrent la présence de l'ensemble des radioéléments identifiés dans les effluents bruts, avec des teneurs bien supérieures à celles mesurées dans les eaux. La décantation des agrégats supportant une partie des éléments radioactifs favorise leur concentration dans les boues dites primaires.

Les différentes étapes liées au traitement des boues vont jouer un rôle sur le devenir de ces éléments. Après épaissement, les boues sont injectées dans des digesteurs primaires puis secondaires où elles vont séjourner près de 30 jours. Ce stockage favorise l'élimination des radioéléments par décroissance radioactive. Au terme de la digestion le ^{99m}Tc (élément prépondérant) a totalement disparu. Malgré cela, la charge radioactive restante dans les boues après digestion demeure importante et est essentiellement due à ¹³¹I. Ainsi l'ensemble des boues injectées dans le four au cours d'une journée peut représenter jusqu'à 2 à 3 millions de Becquerel en ¹³¹I.

La filière de traitement des boues se termine par l'incinération des boues sur le site. Les mesures montrent qu'à l'exception de ¹³¹I, les radioéléments sont conservés dans les cendres. Près de la totalité de l'iode présent dans les boues est transférée aux eaux de lavages des fumées qui retournent en tête de station. Il n'est pas exclu qu'une faible partie de l'iode s'échappe par la cheminée avec la vapeur d'eau. On notera que, du fait de sa période relativement longue (8 jours) par rapport aux autres radioéléments traités ici et de sa radiotoxicité élevée, le devenir de l'¹³¹I à cette étape doit être pris en considération.

Le suivi du milieu aquatique recevant les eaux usées a montré, outre un marquage lié à l'utilisation civile et militaire de l'énergie nucléaire, une contribution des rejets de la station d'épuration. Seul ¹³¹I est détecté dans les sédiments fins de rivière, ce dernier jouant un rôle non négligeable dans l'épuration des eaux en fixant cet élément. La présence de ¹³¹I, dans le

¹⁵ Lors des traitements ou diagnostiques, l'activité injectée au patient est éliminée partiellement ou totalement par les urines, les selles, la salive.

milieu aquatique en aval de la station d'épuration, avait déjà été mis en évidence lors de précédentes études dans l'Orne, en aval de la station¹⁶ et dans le canal de navigation¹⁷.

En conclusion, cette étude, indique bien, et sur la durée, l'existence d'une charge radioactive à l'intérieur du réseau d'assainissement. Les radioéléments artificiels identifiés ici sont utilisés dans le cadre médical à des fins de diagnostic et/ou à des fins curatives. Or, ces activités sont encadrées sur le plan réglementaire. Les services de médecine nucléaire doivent assurer une gestion stricte des déchets radioactifs, et en particulier des rejets liquides. Ainsi sur les lieux de manipulation, les effluents sont dirigés vers des cuves de stockage étanches favorisant l'élimination des radioéléments par décroissance radioactive avant évacuation en rejet banalisé. Mais cette gestion ne s'applique pas aux traitements ambulatoires (ou diagnostics) des patients où l'activité des marqueurs isotopiques administrée échappe à la « zone contrôlée » lorsque la personne quitte le service. Une partie relativement importante de l'activité administrée évacuée par voie naturelle (urines, selles, salive, larmes...) va transiter à travers le réseau d'assainissement. Une étude réalisée sur un centre régional de lutte contre le cancer¹⁸ [S. LAUGLE et J.C. HOUY ; 1999] montre que pour un contrôle loco régional suite à un traitement pour cancer thyroïdien, des quantités traceuses d'iode 131, dont l'activité est comprise entre 74 MBq et 222 MBq, sont injectées au patient. En fin de première semaine, l'activité globale éliminée sera de 54% de l'activité initiale, en fin de deuxième semaine l'élimination sera de 0,17%. Le patient n'étant plus hospitalisé, les rejets se font directement dans les égouts de la ville. Il en est de même pour ^{99m}Tc utilisé largement dans d'autres examens de diagnostics. La contamination du réseau va donc dépendre de la nature des pratiques médicales, de leurs fréquences, des quantités de produit utilisées et dans le cas d'une injection à un patient du temps d'élimination du produit par l'organisme.

Il est difficile, à partir de cette étude, de dissocier la fraction de la charge rejetée par les hôpitaux et cliniques de celle émise par les « sources diffuses » que constitue l'ensemble des patients traités une fois sortis du milieu hospitalier. Pour y répondre, il est nécessaire de poursuivre cette étude en amont, à l'intérieur du réseau d'assainissement, au niveau des collecteurs. Ceci permettrait en outre de renforcer le bilan radiologique en s'affranchissant des problèmes de dilution, dus aux masses d'eau mises en jeu, et des problèmes de décroissance

¹⁶ *Etude de la qualité radiologique des eaux marines et continentales du littoral Normand ; AESN/ACRO ; 1997.*

¹⁷ Mesures effectuées par ACRO en 1998.

¹⁸ Etude réalisée au Centre Eugène Marquis de Rennes (35) à partir de 1995.

radioactive dus au temps de latence dans le réseau d'assainissement ; ces deux facteurs entraînant comme nous l'avons vu une perte d'information. Dans ce contexte, il conviendrait qu'une telle étude prenne plus étroitement en compte la pratique des utilisateurs ; une collaboration avec les structures hospitalières est indispensable.

Bibliographie

Auffret J.P., Guéguénat P., Lepy M.C., Patty J.P. et Saur H., Les radionucléides émetteurs gamma dans les sédiments de l'estuaire de l'Orne pendant les années 1977-1983. *Actes de colloques de l'IFREMER*, 1985.

Baudin J.P., Lambrechts A. et Pally M., 1991. Utilisation des mousses aquatiques comme bioindicateurs de contamination radioactive. *Hydroécol. Appl.*, tome 3, volume 2, pp. 209-240.

Caput C., H. Camus, D. Gauthier, Y. Belot, Etude expérimentale du lavage de l'iode par la pluie ; *Radioprotection* ; 1993 ; Vol. 28, n°1, p15-22.

C.S.H.P.S. (Conseil Supérieur d'Hygiène Publique de France) – section des eaux –, Risques sanitaires liés aux boues d'épuration des eaux usées urbaines ; *Technique et documentation* ; 1998.

Laugle S., Houy J.C., Améliorations de la gestion des déchets radioactifs d'un centre régional de lutte contre le cancer ; *Contribution au 20ème congrès A.T.S.R.* ; Décembre 1999.

O.P.R.I. (Office de Protection contre les Rayonnements Ionisants), *Rapports d'activités* ; années 1997 et 1998.

Pigrée G., 1999. Qualité radiologique des eaux marines et continentales du littoral normand. Synthèse des travaux 1997/98 ; *Etude AESN/ACRO*.

Arrêté du 30 octobre 1981 relatif aux conditions d'emploi des radioéléments artificiels utilisés en source non scellées à des fins médicales – *Journal officiel – Brochure n° 1420*.